



Elaboration et caracterisation de nanostructures magnetiques

Adriana Paula Popa

► To cite this version:

Adriana Paula Popa. Elaboration et caracterisation de nanostructures magnetiques. Matière Condensée [cond-mat]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2004. Français. <tel-00010782>

HAL Id: tel-00010782

<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00010782>

Submitted on 26 Oct 2005

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

présentée par

Adriana Paula POPA

pour obtenir le titre de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER- GRENOBLE 1

spécialité : **PHYSIQUE**

ELABORATION ET CARACTERISATION DE NANOSTRUCTURES MAGNETIQUES

Date de soutenance : 23 novembre 2004

COMPOSITION DU JURY :

M. Emil BURZO	Rapporteur
M. Michel VIRET	Rapporteur
M. Pascal XAVIER	Examineur
M. Luc PIRAUX	Examineur
M. Kamel OUNADJELA	Directeur de thèse
Mme. Ursula EBELS	Invité
M. Bernard DIENY	invité
M. Marco NATALI	Invité

Thèse préparée au sein des laboratoires :
CNRS/IPCMS- Strasbourg et CEA-CNRS/SPINTEC- Grenoble

Remerciements

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé au Département de Recherche Fondamental sur la Matière Condensée du CEA Grenoble au sein du laboratoire SPI NTEC. A ce titre, je voudrais remercier Monsieur J. P. Nozieres, Directeur du Laboratoire SPI NTEC pour m'avoir accueillie et pour son soutien pendant ma thèse.

J'adresse toute ma reconnaissance à Monsieur Pascal Xavier, Professeur à l'Université Joseph Fourier de Grenoble, qui a accepté de présider le jury de cette thèse, ainsi qu'aux Messieurs Emil Burzo et Michel Viret pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon mémoire en tant que rapporteurs. Je remercie également Monsieur Luc Piraux d'avoir participé à ce jury de thèse.

Je voudrais remercier Monsieur Kamel Ounadjela, mon directeur de thèse, pour l'opportunité qu'il m'a offert de réaliser cette thèse.

Je témoigne ma gratitude à Madame Ursula Ebels qui m'a encadré pendant ces quatre années de thèse. Merci Ursula pour ta disponibilité et pour ta patience pour corriger ce manuscrit !

Je voudrais également remercier Monsieur Bernard Dieny pour avoir encadré une partie de cette thèse.

J'adresse ma profonde reconnaissance à Monsieur Emil Burzo grâce à qui j'ai eu la possibilité de commencer ce travail. Merci pour la confiance que vous m'avez accordé !

Cependant, avant de finir, j'aimerais remercier tous les gens qui m'ont aidé à mener ce travail à terme et plus particulièrement à :

Marco Natali pour les discussions enrichissantes concernant le magnétisme des plots circulaires. Ca a été un plaisir de travailler avec toi !

Prof. Luc Piraux de L' Université Catholique de Louvain pour m'avoir offert l'opportunité de travailler sur un système tellement intéressant : les nanofils. Merci Laurent et Michael pour les nombreux échantillons que vous m'avez fournies !

Pascale Bayle et Laure Guetaz pour leur aide dans le domaine de la microscopie électronique en transmission.

Madame Claire Baraduc, Vincent et Christophe, pour avoir gentiment accepté de lire ce manuscrit et corrigé les fautes de française.

Tous mes collègues de SPINTEC, permanents, doctorants et post doctorants avec lesquels j'ai partagé des bons moments.

Mes amis qui m'ont soutenu pendant ces quatre ans : Dana et Stefan, Alexandre, Hanna, Ioana, Marta, Alina, Lili, Lucian, Cristi, Adi, Cori, Silviu.

Ce travail a été soutenu financièrement par le Contact Européen Nanoscale Magnétic Particles HPRN CT- 1999-00150.

Table des matières

INTRODUCTION GENERALE.....	5
-----------------------------------	----------

Chapitre 1 : LE MAGNETISME D'UN SYSTEME FERROMAGNETIQUE

1.1. Introduction.....	9
1.2. La théorie du micromagnétisme	10
1.2.1. Energie libre d'un système ferromagnétique.....	11
1.2.1.1 L'énergie d'échange.....	11
1.2.1.2 L'énergie d'interaction dipolaire.....	12
1.2.1.3 L'énergie d'anisotropie.....	13
1.2.1.4 L'énergie Zeeman.....	15
1.2.2 Equation Landau- Lifshitz – Gilbert.....	15
1.3. Domaines magnétiques et parois dans des couches minces.....	17
1.3.1 Domaines magnétiques.....	17
1.3.2 Parois magnétiques.....	19
1.3.2.1 Les parois symétriques.....	19
1.3.2.2 La structure interne d'une paroi dans les fils.....	21
1.3.3 D'autres types d'inhomogénéités de l'aimantation : l'état vortex.....	22
1.4. Les modes de retournement de l'aimantation	24
1.4.1 Cas du retournement de l'aimantation uniforme.....	24
1.4.2 Cas du retournement de l'aimantation non-uniforme	25
1.4.3 Renversement de l'aimantation par nucléation et propagation des parois....	27
1.5. Le magnétisme des petites particules.....	28
Références bibliographiques du chapitre 1.....	30

Chapitre 2 : ELABORATION ET CARACTERISATION DES ECHANTILLONS

2.1. Introduction.....	34
2.2. Méthode expérimentale d'élaboration des échantillons	35
2.2.1 Pulvérisation cathodique	35
2.2.1.1 Recuit ex-situ.....	40

2.2.2 Les techniques de préparation des réseaux de plots.....	40
2.2.2.1 La nano- impression	40
2.2.2.2 La lithographie électronique et la gravure.....	41
2.2.3 L'électrodéposition des fils de Co.....	43
2.3 Caractérisation structurale des échantillons	45
2.3.1 Microscope électronique par transmission (TEM).....	45
2.4. Caractérisation magnétique des échantillons	48
2.4.1 Le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM).....	49
2.4.2 SQUID (Superconducting Quantum Inteferometer Device).....	50
2.4.3 L'effet Kerr magnéto-optique (MOKE).....	52
2.4.4 Microscope à force magnétique (MFM).....	54
Références bibliographiques du chapitre 2.....	58
 Chapitre 3 : PLOTS CIRCULAIRES, L'INFLUENCE DES INTERACTIONS DIPOLAIRES	
3.1 Introduction	61
3.2 Le cas d'un plot isolé.....	62
3.3 Systèmes des plots en interaction dipolaire	66
3.4 La description du système étudié.....	67
3.5 Corrélation des chiralités des vortex dans des réseaux des plots.....	68
3.5.1 Réseau carré des plots circulaires espacés.....	69
3.5.2 Réseau de chaînes de deux plots.....	70
3.5.3 Réseau des chaînes des plots arrangés en zig- zag.....	73
3.5.4 Réseau des plots arrangés dans une structure hexagonale.....	76
3.6 L'influence des interactions dipolaires sur la dépendance angulaire du champ de nucléation et d'annihilation pour différents types de structures.....	78
3.7 Conclusion	83
Références bibliographiques du chapitre	84
 Chapitre 4 : MAGNETISME DE RESEAUX DES PLOTS CARRES	
4.1 Introduction	88
4.2 Le cas d'un plot isolé.....	89

4.2.1 Les états fondamentaux d'un plot isolé.....	89
4.2.2 Contraste magnétique	90
4.3 Comparaison entre systèmes des plots carrés et circulaires.....	91
4.4 Description du système étudié.....	93
4.5 Calculs des interactions dipolaires provenant des tranchés et des plots voisin.....	94
4.6 L'état fondamental et l'état de la rémanence.....	96
4.6.1 Le contraste magnétique en faible champ.....	97
4.6.2 Contraste magnétique du à la couche de Co du tranchés.....	98
4.7 Magnétisme macroscopique des plots de Co : étude MOKE.....	99
4.7.1 Dépendance de la séparation S entre les plots.....	99
4.7.2 Dépendance angulaire.....	102
4.8 Magnétisme microscopique des plots de Co : étude MFM.....	104
4.8.1 Renversement de l'aimantation dans des réseaux des plots espacés.....	104
4.8.2 Renversement de l'aimantation dans des réseaux des plots serrés	105
4.8.3 La variation du champ de nucléation et d'annihilation du vortex.....	107
4.8.4 Corrélation de l'aimantation : aimantation en zig- zag.....	109
4.9. Conclusions	110
Références bibliographiques du chapitre	111

Chapitre 5 :L'ELABORATION DES NANOPARTICULES PAR IRRADIATION ELECTRONIQUE

5.1. Introduction.....	114
5.2. Différents types de croissance d'un métal sur un oxyde	116
5.3. Préparation et caractérisation magnétique des échantillons	117
5.3.1 Préparation et caractérisation magnétique des couches Co/SiO ₂	117
5.3.1.1 Optimisation de la température de dépôt	118
5.3.1.2 L'influence de l'épaisseur de la couche et de la température de recuit sur ses propriétés magnétiques.....	125
5.3.2 Préparation et caractérisation magnétique des couches Co/SiN	129
5.4. Irradiation par un faisceau d'électrons provenant d'un TEM	134
5.4.1 L'effet de l'irradiation de couches discontinues de Co	134
5.4.2 L'effet de l'irradiation de couches continues de Co.....	139

5.5. Conclusion	142
Références bibliographiques du chapitre	144

Chapitre 6 : FILS ELECTRODEPOSES DE CO, CARACTERISATION MAGNETIQUE ET STRUCTURALE

6.1. Introduction	147
6.2. Description du système étudié	148
6.3. Interaction dipolaire entre les fils dans la membrane	150
6.4. L'influence du diamètre de fils sur leurs propriétés	152
6.4.1 Etude TEM	153
6.4.2 Etude MFM	161
6.4.3 Mesures AMR sur des fils de 60nm diamètre	164
6.5 L'influence du pH de la solution électrolytique	167
6.5.1 Caractérisation VSM	171
6.5.2 Caractérisation RFM	174
6.5.3 Caractérisation MFM	176
6.6 L'influence du courant de dépôt	176
6.6.1 Caractérisation RFM	176
6.6.2 Caractérisation TEM	177
6.6.3 Caractérisation VSM	180
6.7. Conclusions	184
Perspectives	185
Références bibliographiques du chapitre	187

CONCLUSIONS GENERALES	190
------------------------------------	------------

ANNEXES

Annexe 1 : Calcul du champ dipolaire	193
Annexe 2 : Images des diffraction théoriques	195
Annexe 3 : Simulations micromagnétiques avec le logiciel OOMMF	199

Introduction générale

Un des aspects centraux dans le domaine du micromagnétisme concerne la configuration de l'aimantation pour un système donné. La diminution de la taille du système ou les interactions dipolaires, sont quelques facteurs qui peuvent influencer cette configuration.

Avec la diminution de la taille d'un système, les configurations de l'aimantation sont susceptibles de variations importantes. Par exemple, une couche mince de taille largement micrométriques restera dans un état pratiquement monodomaine avec des domaines aux bords dus aux champs démagnétisants latéraux. Quand la taille du système diminue, les domaines de bord dominant et ainsi les systèmes vont préférer des configurations multidomaines. En diminuant les tailles jusqu'à des valeurs comparables à la longueur d'échelle du magnétisme (largeur des parois, vortex), le nombre des configurations devient de plus en plus discret^{1,2}.

La caractérisation de ces états discrets, ainsi que le renversement de l'aimantation de ces systèmes nanométriques entre deux états occupe aujourd'hui une activité centrale pour l'étude fondamentale mais également pour les applications. Notamment, des éléments avec un état quasi monodomaine constitue un élément clé dans les mémoires magnétiques³. Leur application dans la fabrication des mémoires magnétiques est liée de l'accomplissement de quelques conditions, comme par exemple: un retournement reproductible de l'aimantation d'une écriture à l'autre, retournement qui doit avoir lieu dans un intervalle de temps de l'ordre des nanosecondes. Ceci implique non seulement une faible distribution des champs de retournement, mais aussi un contrôle précis du champ magnétique local, qui agisse au niveau de chaque nano- objet. Ces paramètres sont reliés à l'homogénéité de la taille des objets ainsi qu'aux interactions magnétostatiques qui deviennent importantes dans les réseaux d'objets très denses.

Ces interactions peuvent être gênantes pour l'adressage et la stabilité d'un point mémoire. Par contre elles peuvent être également exploitée, comme l'a suggéré Cowburn⁴, pour propager un état donné le long d'une chaîne de plots et ainsi transmettre l'information.

¹ B. Heinrich, J.A.C. Bland, « Ultrathin Magnetic Structures », Springer, Berlin (1994)

² A. Hubert, R. Schafer, « Magnetic domains », Springer, Berlin (1998)

³ S. Y. Chou, P.R. Krauss and P.J. Renstrom, Science, **272**, 85 (1996)

⁴ R. Cowburn, Phys. Rev. B, **65**, 092409 (2002)

Introduction générale

Dans mon travail, présenté ici, seront également considérés les effets des interactions dipolaires sur des systèmes de plots, plots qui ont comme état fondamental l'état vortex. Je me suis concentrés sur l'étude de deux systèmes de taille et forme différente. Tout d'abord nous montrons la possibilité de contrôler la chiralité d'un vortex en arrangeant les plots circulaires dans différentes configurations. Dans le cas du deuxième système étudié, les plots carrés, ce qui a suscité notre intérêt a été le renversement de l'aimantation et l'influence des interactions dipolaire sur leur comportement magnétique.

En plus de l'étude des propriétés magnétiques, un point de grande importance est la fabrication de ces nanosystèmes. Au fil des années plusieurs méthodes de préparation se sont développées, le défi étant de trouver une méthode de fabrication rapide, moins coûteuse et d'un grand rendement. En plus, cette méthode doit fournir des systèmes de taille la plus petite possible. Parmi les méthodes conventionnelles sera mentionné la lithographie par faisceau d'électrons et par nano- impression qui peuvent donner des tailles de l'ordre 50nm. Pour descendre en dessous de cette taille différentes méthodes ont été mises au point^{5,6} méthodes comme par exemple la lithographie en champ proche.

Dans ce contexte, je vais présenter une technique de préparation qui consiste en l'échauffement local d'une couche mince avec un faisceau d'électrons qui nous a permis d'obtenir des particules de taille d'environ 10nm.

Finalement, pour certaines études fondamentales mais aussi pour des applications, il se pose la question de contrôler les paramètres qui déterminent l'orientation de l'aimantation à l'équilibre dans un système. Le contrôle de ces paramètres peut s'achever par la détermination de la méthode adéquate de préparation et des conditions optimales de croissance, type du substrat, température, épaisseur pour des couches continues ou systèmes lithographiés. Cette optimisation des paramètres nous l'avons réalisé sur des systèmes de forme filaire, préparés par électrodéposition dans le laboratoire PCPM/Louvain. Pour cela je vais montrer par des études VSM et TEM que la variation du courant de déposition et du pH de la solution du bain électrolytique induit des changements importants dans l'orientation de l'aimantation à l'intérieur de ces fils.

⁵ K. Bessho, Y. Iwasaki, S. Hashimoto, J. Appl. Phys, **79**, 5057 (1996)

⁶ S.P. Li, W.S.Lew, Y.B. Xu, A. Hirohata, A. Samad, F. Baker, J.A.C. Bland, Appl. Phys. Lett. **76**, 748 (2000)

Introduction générale

Ce manuscrit est structuré de la manière suivante :

Le *premier chapitre* présente quelques notions de base du micromagnétisme et une description des différents processus de renversement de l'aimantation nécessaires pour mieux comprendre les phénomènes mis en évidence par la suite.

Dans le *chapitre 2*, nous présentons les différentes techniques expérimentales qui ont été utilisés pour la fabrication des nanostructures étudiées ainsi que les techniques qui ont été utilisées pour leur caractérisation structurale et magnétique.

Le *chapitre 3* est consacré à l'étude des réseaux des plots circulaires réalisés par la lithographie nano- impression. Les plots ont un diamètre de 900nm et une épaisseur de 30nm. La taille de ces plots fait que leur état fondamental est l'état vortex. Les plots sont arrangés en différentes structures : chaînes de deux plots, chaînes de plots en zig- zag, structure hexagonale où les interactions dipolaires entre les plots jouent un rôle important. Je montrerai que dans certaines situations les interactions dipolaires peuvent influencer la chiralité de vortex.

Un autre système de plots, cette fois de forme carrée est étudié dans le *chapitre 4*. Pour la préparation de ces plots une approche originale a été utilisée qui consiste à structurer l'échantillon dans un motif voulu, sur lequel une couche mince magnétique est déposée (dans notre cas Co). Une étude magnétique en utilisant la microscopie à force magnétique (MFM) et l'effet Kerr magnéto-optique longitudinal a été réalisée pour des réseaux pour lesquels la séparation entre les plots varie entre 50nm et 350nm. La taille latérale des plots est de 200nm et leur épaisseur est de 20nm

Le *cinquième chapitre* présentera notre travail de réalisation d'une technique alternative de préparation de nanoparticules avec un diamètre qui ne dépasse pas quelques nanomètres. Cette technique est une technique alternative de préparation qui consiste dans le chauffage d'une couche continue de Co déposée sur SiO₂ ou SiN avec un faisceau d'électrons provenant d'un microscope MEB ou TEM. Ce chauffage local va créer des particules de Co de différentes tailles.

La détermination de paramètres qui influencent l'orientation de l'axe c dans des fils de Co de structure hcp est présentée dans le dernier chapitre de cette thèse. Ces fils sont obtenus par l'électrodéposition du Co dans les pores d'une membrane polycarbonée. Nous avons étudié l'influence des paramètres tels que : le diamètre des fils, le pH de la solutions électrolytique et le courant de dépôt par des études VSM, TEM et MFM.

Chapitre 1

Le magnétisme d'un système ferromagnétique

1.1. Introduction	9
1.2. La théorie du micromagnétisme	10
1.2.1. Energie libre d'un système ferromagnétique	11
1.2.1.1 L'énergie d'échange	11
1.2.1.2 L'énergie d'interaction dipolaire	12
1.2.1.3 L'énergie d'anisotropie	13
1.2.1.4 L'énergie Zeeman	15
1.2.2 Equation Landau- Lifshitz – Gilbert	15
1.3. Domaines magnétiques et parois dans des couches minces	17
1.3.1 Domaines magnétiques	17
1.3.2 Parois magnétiques	19
1.3.2.1 Les parois symétriques	19
1.3.2.2 La structure interne d'une paroi dans les fils	21
1.3.3 D'autres types d'inhomogénéités de l'aimantation : l'état vortex	22
1.4. Les modes de retournement de l'aimantation	24
1.4.1 Cas du retournement de l'aimantation uniforme	24
1.4.2 Cas du retournement de l'aimantation non-uniforme	25
1.4.3 Renversement de l'aimantation par nucléation et propagation des parois	27
1.5. Le magnétisme des petites particules	28
Références bibliographiques du chapitre 1	30

1.1. Introduction

Dans ce chapitre nous rappelons les éléments théoriques nécessaires aux explications ultérieures de nos résultats expérimentaux.

Il s'agit tout d'abord de reprendre quelques notions de base de la théorie du micromagnétisme. Cette théorie est apparue au début des années 30 [Landau_35][Brown_63] pour expliquer le processus du renversement de l'aimantation et les effets d'hystérésis dans les milieux ferromagnétiques. Aujourd'hui elle permet de comprendre la stabilité des configurations magnétiques des nanostructures ainsi que leur dynamique de retournement de l'aimantation.

La compréhension de la théorie du micromagnétisme nécessite la connaissance des énergies qui caractérisent un système ferromagnétique : l'énergie d'échange, l'énergie magnétostatique, l'énergie Zeeman, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline, énergies qui seront présentées dans la première partie de ce chapitre. La somme de ces énergies nous donne l'énergie totale d'un système et sa minimisation permet de déterminer son état d'équilibre. Les critères énergétiques qui conduisent à la formation des domaines et les différents types de parois seront présentés par la suite.

L'évolution d'un système magnétique vers un minimum global ou local d'énergie est obtenue par l'équation Landau- Lifshitz- Gilbert. Cette équation décrit la dynamique de l'aimantation comme l'évolution de l'aimantation entre deux états d'équilibre ou les oscillations de l'aimantation \vec{M} autour de l'équilibre.

Le passage d'un état d'équilibre à un autre peut s'effectuer par plusieurs types de retournement de l'aimantation. Quelques notions de base concernant le retournement: uniforme et non uniforme (« bucking » et « curling ») et par nucléation et propagation de parois seront également présentées.

Comme les systèmes étudiés pendant cette thèse sont de tailles nanométriques, la dernière partie de ce chapitre sera dédiée à l'influence de la taille de petites particules sur leurs propriétés magnétiques.

1.2. La théorie du micromagnétisme

La théorie du micromagnétisme a été conçue pour décrire la distribution de l'aimantation dans les milieux ferromagnétiques et ferrimagnétiques continus. Elle permet de décrire les configurations magnétiques à l'échelle des parois et des domaines magnétiques. Cette théorie passe sous silence les détails atomiques de l'origine de l'ordre magnétique. C'est pourquoi des variables continues sont utilisées pour décrire des grandeurs thermodynamiques telles que l'aimantation, les champs internes ou l'énergie du système, même si leur origine se trouve au niveau atomique.

Son applicabilité est donc limitée à des systèmes pour lesquels les grandeurs thermodynamiques varient lentement avec la position [Brown_63].

Cette théorie permet la détermination des états d'équilibre d'un système ferromagnétique. Les états d'équilibre sont obtenus par la minimisation de l'énergie libre du système. Afin de réaliser cette minimisation d'énergie des calculs numériques sont nécessaires.

L'énergie libre totale d'un système ferromagnétique comporte plusieurs contributions : l'énergie d'échange E_{ech} , l'énergie d'interaction dipolaire E_{dip} , l'énergie d'anisotropie E_{anis} et l'énergie Zeeman E_{Zeeman} :

$$E_{totale} = E_{ech} + E_{dip} + E_{anis} + E_{Zeeman} \quad (1.1)$$

Les énergies qui constituent l'énergie totale d'un système ferromagnétique peuvent être divisées en deux catégories: les énergies locales et les énergie non-locales.

a) Les termes des *énergies locales* sont basés sur une énergie qui est donnée seulement par les valeurs locales de la direction d'aimantation.

$$E_{loc} = \int f(\vec{m}) dV \quad (1.2)$$

$f(\vec{m})$ est une densité d'énergie qui dépend de l'aimantation \vec{M} ($\vec{M} = \vec{m}/V$)

L'énergie d'anisotropie, l'énergie Zeeman peuvent être considéré comme des énergies locales.

b) Parmi les énergies non-locales on compte : l'énergie d'interaction dipolaire. Les termes de ces énergies contiennent un couple du vecteur d'aimantation qui dépend à chaque point de la direction de l'aimantation de tous les autres points. Ces énergies non-locales sont calculées par un intégrale double.

1.2.1 Energie libre d'un système ferromagnétique

1.2.1.1 L'énergie d'échange

En dessous d'une certaine température critique, les moments magnétiques des matériaux ferromagnétiques présentent un comportement collectif. Ce comportement est induit par les interactions d'échange qui agissent entre les moments magnétiques et qui favorisent un ordre ferromagnétique. Au dessus de cette température, l'ordre magnétique est détruit par l'activation thermique et le système est dans un état paramagnétique.

L'interaction d'échange est de nature quantique et elle est très importante entre les moments voisins mais s'atténue vite avec la distance.

Le décalage entre les cosinus directeurs des moments voisins coûte au système une énergie nommée énergie d'échange. Elle est une énergie isotrope qui s'exprime en fonction des gradients des cosinus directeurs de l'aimantation sous la forme :

$$E_{ech} = A \int_V (\nabla \vec{m})^2 dV \quad (1.3)$$

ou V est le volume du système ferromagnétique.

Dans une forme plus explicite, cette énergie s'écrit:

$$E_{ech} = \int_V \left\{ A \cdot [(\nabla m_x)^2 + (\nabla m_y)^2 + (\nabla m_z)^2] \right\} dV \quad (1.4)$$

où $\vec{m} = \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} = \frac{\vec{M}}{M_S}$ et M_S est l'aimantation à la saturation.

A (J/m) est la constante d'échange du matériau.

1.2.1.2 L'énergie d'interaction dipolaire (énergie magnétostatique)

La distribution non-homogène de l'aimantation à l'intérieur d'un système ferromagnétique est responsable de l'apparition de charges magnétiques de volume et de surface qui créent un champ magnétique dipolaire. Ce champ dipolaire s'exprime de la manière suivante:

$$\vec{H}_d = -\vec{\overline{N}} \cdot \vec{M} \quad (1.5)$$

où $\vec{\overline{N}}$ est un tenseur démagnétisant qui dans le cas d'un échantillon aimanté uniformément peut s'écrire :

$$\vec{\overline{N}} = \begin{bmatrix} N_x & 0 & 0 \\ 0 & N_y & 0 \\ 0 & 0 & N_z \end{bmatrix} \quad N_x + N_y + N_z = 1 \quad (1.6)$$

Le champ dipolaire induit une anisotropie dans le système, dite anisotropie de forme, car les composantes du tenseur $\vec{\overline{N}}$ ne sont pas égales, en général [Hubert_98].

Pour les systèmes de taille finie, l'énergie magnétostatique tend à refermer les lignes de flux magnétiques au sein de la matière aimantée pour éviter la formation de pôles. Ainsi le champ démagnétisant s'oppose à la formation d'un état uniformément aimanté et il est responsable de la formation de domaines magnétiques.

L'expression de l'énergie du champ démagnétisant est :

$$E_{dip} = -\frac{1}{2} \cdot \mu_0 \int_V \vec{M}(\vec{r}) \cdot \vec{H}_d(\vec{r}) dV \quad (1.7)$$

ou \vec{H}_d lui-même se calcule comme un intégrale sur le volume.

L'interaction magnétostatique est beaucoup plus faible que l'interaction d'échange entre les moments voisins, mais devient prépondérante à grandes distances.

Les deux types d'interactions qui apparaissent dans un système ferromagnétique : l'interaction d'échange et l'interaction magnétostatique, ont chacun leur propre zone d'influence. La compétition entre ces deux types d'interactions définit une distance caractéristique nommée la longueur d'échange (l_{ech}). Elle représente le rapport des racines des énergies caractéristiques mises en jeu : l'énergie d'échange et l'énergie magnétostatique :

$$l_{ech} = \sqrt{\frac{2 \cdot A_{ech}}{\mu_0 \cdot M_s^2}} \quad (1.8)$$

Les interactions d'échange sont dominantes quand les distances entre les moments magnétiques sont plus petites que la longueur d'échange (l_{ech}). Pour des distances plus grandes que la longueur d'échange les interactions dipolaires deviennent dominantes.

Dans la zone d'influence de l'échange, chaque moment est contraint de ne pas s'écarter beaucoup par rapport à ses voisins. En s'éloignant, les moments situés à des distances plus grandes que la longueur d'échanges peuvent être considérés indépendants du moment d'origine.

1.2.1.3 L'énergie d'anisotropie

L'orientation des moments magnétiques a une direction privilégiée par rapport à la symétrie du réseau. Ceci est dû au fait que les moments magnétiques interagissent avec le réseau cristallin via les interactions spin-orbite. Cette direction privilégiée est nommée axe de facile aimantation.

La déviation des moments magnétiques par rapport à l'axe facile conduit à l'augmentation de l'énergie du système via une énergie nommée énergie d'anisotropie magnéto-cristalline.

Selon la symétrie du réseau, l'anisotropie magnéto-cristalline peut être : uniaxiale, cubique ou hexagonale. Au voisinage de la surface du cristal, la brisure de la symétrie peut induire une anisotropie surfacique importante.

Une expression phénoménologique de l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline qui tient compte de l'orientation du vecteur unité de l'aimantation \vec{m} , peut être déterminée à l'aide d'un développement en puissance des cosinus directeurs du moment magnétique pour chacun des sites.

Pour un système avec une anisotropie uniaxiale, l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline est exprimée à l'aide d'un seul terme d'ordre 2 :

$$E_{anis} = \int_V K_u \left[1 - (\vec{u}_k \cdot \vec{m}(r))^2 \right] dV, \quad (1.9)$$

où $\vec{m} = \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} = \frac{\vec{M}}{M_S}$ et K_u est la constante d'anisotropie, et \vec{u}_k est le vecteur de l'axe

d'anisotropie magnéto- cristalline (l'axe c).

Le champ magnétique d'anisotropie uniaxiale s'exprime en fonction de \vec{m} de la façon suivante :

$$H_u = \frac{2 \cdot K_u}{\mu_0 \cdot M_S} \cdot \vec{u} \cdot (\vec{u} \cdot \vec{m}) \quad (1.10)$$

Un paramètre indicatif de l'intensité de l'anisotropie magnéto- cristalline d'un système est le facteur de qualité $Q = \frac{2K_u}{\mu_0 M_S}$, qui représente le rapport entre l'énergie magnéto- cristalline et l'énergie démagnétisante. Ce paramètre permet de savoir si l'anisotropie magnéto- cristalline est suffisamment forte pour que les moments magnétiques soient ou non orientés suivant sa direction au voisinage des surfaces.

En plus de l'anisotropie magnéto- cristalline présentée auparavant et de l'anisotropie de forme qui a comme origine les interactions dipolaires (voir section 1.2.1.2), un autre type d'anisotropie a été mis en évidence pour certains systèmes: l'anisotropie configurationnelle.

Ce type d'anisotropie a été proposé pour la première fois en 1988 par Schabes et Bertram [Schabes_88] dans le cas de cubes magnétiques. L'origine de cette anisotropie est due au fait que la forme des particules avec des bords aiguisés induit des déviations de l'aimantation, déviations qui sont dépendantes de la direction du moment magnétique par rapport aux axes de la nanostructure.

Cette notion a été reprise plus tard par Cowburn [Cowburn_98b] pour des plots plats carrés de NiFe. L'énergie d'un plot carré aimanté uniformément est indépendante de la direction de l'aimantation dans le plan du plot. Par contre, en réalité, l'aimantation n'est pas uniforme, des non- uniformités dans la distribution de l'aimantation au bord des plots apparaissent.

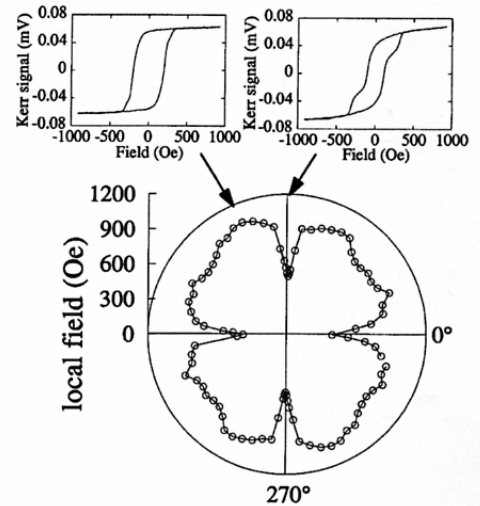


Fig. 1.1 Représentation en coordonnées polaires du champ effectif d'un plot carré de FeNiMo en fonction de la direction du champ externe appliqué [Cowburn_98]

En conséquence, l'énergie va avoir des valeurs différentes en fonction de la direction de l'aimantation.

Les résultats expérimentaux obtenus par Cowburn pour des plots de taille 150 nm et d'épaisseur 15 nm sont rapportés sur la fig.1.1.

La figure montre la présence d'une anisotropie avec quatre minimas qui correspondent à la situation où l'aimantation est parallèle à l'un des bords de la nanostructure.

1.2.1.4 L'énergie Zeeman

L'énergie déterminée par les interactions entre l'aimantation \vec{M} et un champ magnétique externe est nommée énergie Zeeman. Afin de minimiser cette énergie qui est définie comme :

$$E_{ext} = -\mu_0 \cdot \int_V \vec{M} \cdot \vec{H}_{ext} dV \quad (1.11)$$

chaque moment magnétique du système s'aligne parallèlement au champ magnétique externe \vec{H}_{ext} .

1.2.2. L'équation Landau- Lifshitz- Gilbert

Lorsqu'un champ magnétique homogène \vec{H} , agit sur le moment magnétique \vec{M} , il exerce un couple égale à :

$$\mathbf{M} = \vec{M} \times \mu_0 \vec{H} \quad (1.12)$$

Hors équilibre ($\mathbf{M} \neq 0$), le moment magnétique a une réaction gyroscopique décrite par l'équation :

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = -\gamma \cdot \mu_0 \cdot (\vec{M} \times \vec{H}) \quad (1.13)$$

où γ représente le facteur gyromagnétique $\gamma = \frac{g|e|}{2m_e} > 0$ avec $|e|$ la valeur absolue de la charge de l'électron, m_e la masse de l'électron et g le facteur de Landé qui a une valeur proche de 2 pour la plus part des matériaux ferromagnétiques. Cette équation décrit le

mouvement de précession de l'aimantation \vec{M} autour du champ \vec{H} , mouvement qui conserve à la fois l'amplitude de l'aimantation $|\vec{M}| = M_s$ et l'inclinaison de l'aimantation par rapport au champ $\langle \vec{M}, \vec{H} \rangle = \theta_0$ (fig.1.2).

En générale, dans un système ferromagnétique $\vec{H} = \vec{H}_{eff}$ ou $\vec{H}_{eff} = -\nabla_{\vec{M}} E_{tot}$.

L'équation (1.13) ne peut pas expliquer le changement de l'inclinaison de l'aimantation par rapport au champ. Pour corriger cet aspect, un terme dissipatif est introduit de manière phénoménologique :

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = -\gamma (\vec{M} \times \mu_0 \vec{H}) + \frac{\alpha}{M_s} \left(\vec{M}_s \times \frac{\partial \vec{M}}{\partial t} \right) \quad (1.14)$$

où α est le coefficient d'amortissement (sans dimension) révélateur du taux des pertes énergétiques. Le terme dissipatif ralentit la précession de l'aimantation qui progressivement relaxe vers la direction du champ et atteint l'équilibre statique (fig1.2). Cette équation est connu sous le nom de l'équation Gilbert [Gilbert_55].

Dans la limite d'un faible amortissement l'équation Gilbert devient identique à l'équation proposée quelques années auparavant par Landau et Lifshitz [Landau_35]:

$$(1 + \alpha^2) \frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = -\gamma (\vec{M} \times \mu_0 \vec{H}) - \frac{\alpha \gamma}{M_s} [\vec{M} \times (\vec{M} \times \mu_0 \vec{H})] \quad (1.15)$$

Le mouvement de l'aimantation décrit par l'équation LLG conserve l'amplitude de l'aimantation $|\vec{M}| = M_s$ même après l'insertion du terme de relaxation.

Par rapport à la méthode de minimisation de l'énergie totale d'un système, l'équation LLG tient compte de l'évolution réelle de l'aimantation, de sa dynamique temporelle entre deux états magnétiques. Elle offre une méthode adéquate pour l'étude de processus de renversement et de la dynamique de l'aimantation.

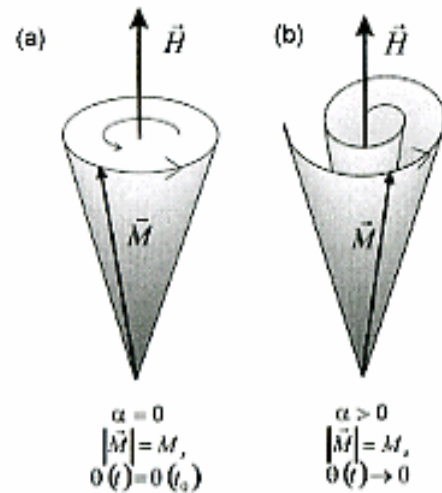


Fig.1.2 Trajectoire de l'aimantation dans un mouvement: a) sans amortissement et b) avec amortissement après l'application d'un champ externe

Afin de résoudre l'équation LLG il faut faire appel à des simulations numériques.

Le traitement numérique nous oblige à partager le système ferromagnétique en unités de base, soit des volumes en cas tridimensionnels (cellule tétraédrique, cubique, orthorhombique, hexagonale), soit de surface en cas bidimensionnel (prisme infini à des section carrée, rectangulaire..). Selon la régularité des éléments de discrétisation des modèles micromagnétiques utilisant la méthode des éléments finis [Fredkin_87] [Bagnérés_91] [Schrefl_99] ou l'approximation des différences finies [Schabes_88] [Nakatani_89] [Scheinfein_91] ont été conçus.

Dans la minimisation de l'énergie libre, certaines limitations sont introduites. Par exemple on ne prend pas en considération la température et des effets tels que les fluctuations thermiques de l'aimantation (les calculs micromagnétiques sont des calculs à $T = 0$ K).

Quand les problèmes micromagnétiques sont résolus numériquement des erreurs peuvent apparaître. Ces erreurs proviennent de la nécessité de discrétiser les systèmes étudiés, considérés comme continus, dans des éléments à l'intérieur desquelles l'aimantation est considérée constante. La reconstitution d'un petit objet magnétique qui a une symétrie circulaire avec des unités de maillage cubiques fait intervenir un autre type d'erreur qui peut être vu comme une rugosité numérique aux bords. Cette erreur peut être éliminée par l'utilisation des unités de maillage avec une taille très fines, taille qui doit être en général plus petite que des longueurs caractéristiques des variations de l'aimantation dans le système tout en restant grande par rapport aux distances interatomiques.

1.3. Domaines magnétiques et parois dans des couches minces

1.3.1 Domaines magnétiques

L'hypothèse de l'existence des domaines au sein des matériaux ferromagnétiques, a été émise par Weiss [Weiss_07] et les premières observations des domaines ont été réalisées dans des cristaux de fer [Kittel].

La présence des domaines a été mise en évidence dans des systèmes micromagnétiques comme par exemple : des matériaux à l'état massif, des couches minces

uniques [Hubert_69], [Miltat_94], [Bochi_95], [Castro_00], des multicouches [Belliard_94] ou des objets nanostructurés [Hubert_98] .

La formation des domaines magnétiques n'est pas la même pour tous les matériaux magnétiques. Leur apparition dépend de la forme et des dimensions des échantillons, ainsi que de la valeur de l'anisotropie. En général on peut dire que l'énergie démagnétisante et les discontinuités dans la distribution de l'aimantation à l'équilibre sont responsables de l'apparition des domaines magnétiques.

Afin d'illustrer la dépendance entre la configuration de l'aimantation et la taille du système, sur la fig. 1.3 nous présentons un diagramme de phase obtenu suite à des calculs micromagnétiques sur des fils de Co avec une largeur w , une épaisseur t , et une anisotropie perpendiculaire au fil, dans le plan [Prejbeanu_01].

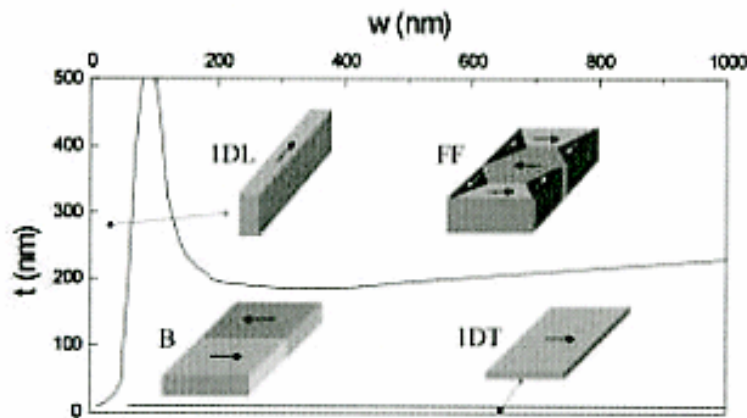


Fig.1.3 Diagramme de phase calculé des états micromagnétiques fondamentaux dans des fils de cobalt en fonction de leur largeur w et de leur épaisseur t . Les limites entre les différentes configurations sont indiquées par des traits continus [Prejbeanu_01]

En fonction des valeurs w et t , le système préfère différents types de domaines. Pour des valeurs w et t petites, le système préfère une configuration de domaines en bandes ouvertes (configuration B sur la diagramme) qui permet une minimisation de l'énergie magnétostatique. En augmentant l'épaisseur du fil la taille des domaines diminue, et en dessous d'une certaine épaisseur critique l'énergie totale du système avec les parois peut dépasser l'énergie magnétostatique d'état monodomaine. En conséquence on retrouve la configuration d'un domaine longitudinal.

Pour des grandes épaisseurs et largeurs, le fil préfère une configuration fermeture de flux (FF) qui assure une énergie magnétostatique nulle.

1.3.2 Parois des domaines

1.3.2.1. Parois symétriques

En 1932 Bloch [Bloch_32] a analysé la distribution spatiale de l'aimantation entre deux domaines magnétiques. Il a observé qu'au passage entre deux domaines magnétiques, l'aimantation tourne beaucoup plus rapidement qu'à l'intérieur des domaines, dans une région nommée paroi de domaine.

En fonction de la rotation de l'aimantation à l'intérieur d'une paroi on peut définir deux types des parois :

Paroi de type Bloch

Pour ce type de paroi la rotation de l'aimantation s'effectue parallèle au plan de la paroi (fig. 1.4). Ce type de paroi est favorable dans le cas des matériaux massifs, car aucune charge magnétostatique de volume n'est créée.

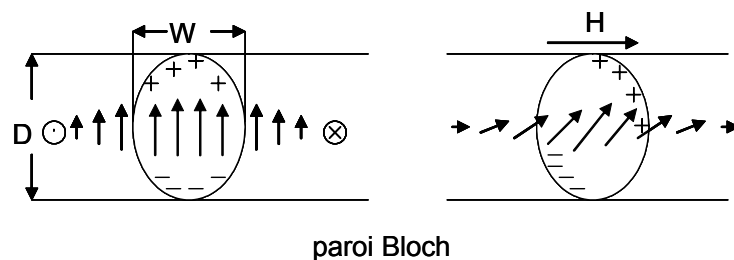


Fig. 1.4 Rotation de l'aimantation dans une paroi Bloch

Dans le cas d'un matériau massif la largeur d'une paroi est déterminée par la compétition entre l'énergie d'échange et l'énergie d'anisotropie magnétocristalline. Dans ce cas l'énergie magnétostatique est négligeable. Si les parois sont étroites, les moments magnétiques adjacents font des angles importants qui conduisent à une grande énergie d'échange. Afin d'avoir une énergie d'échange plus petite on doit avoir une répartition des moments magnétiques à l'intérieure des parois sur une échelle très large, de sorte que l'angle entre deux moments adjacents soit petit. Cependant dans le cas d'une telle transition chaque moment magnétique se trouverait éloigné par rapport à l'axe de facile aimantation. Cela signifierait une augmentation importante de l'énergie d'anisotropie. La largeur d'une paroi est

en conséquence déterminée par la compétition entre l'énergie d'échange et l'énergie d'anisotropie, qui mène à la définition du paramètre de la largeur d'une paroi: $\Delta_0 = \sqrt{\frac{A_{ech}}{K_u}}$.

La paroi de type Néel

La théorie des parois Bloch n'est pas toujours applicable pour des couches minces à anisotropie planaire [Néel_55]. En effet, les charges magnétiques de surface ne sont plus nulles. Par contre si on remplace la rotation de l'aimantation parallèle au plan de la paroi spécifique pour les parois de Bloch avec une rotation perpendiculaire au plan de la paroi, l'énergie totale du système diminuera.

Ce nouveau type de paroi dans laquelle la rotation de l'aimantation s'effectue perpendiculaire au plan de la paroi s'appelle paroi de Néel. (fig. 1.5) [Néel_55]

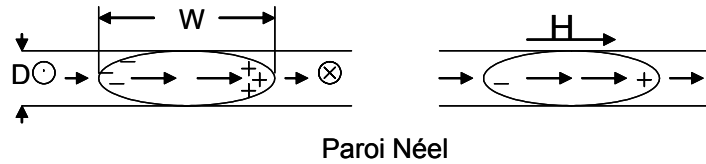


Fig. 1.5 Rotation de l'aimantation dans une paroi de Néel

L'apparition de cette transition est explicable par des arguments simples. On considère les parois comme des cylindres elliptiques de largeur W et épaisseur D . Le facteur démagnétisant associé à ces cylindres dans le cas d'une paroi de Bloch est :

$$N_{Bloch} = \frac{W}{W + D} \quad (1.16)$$

Lorsque W devient plus grand que D , l'énergie démagnétisante augmente et la paroi préfère un mode Néel. Le facteur démagnétisant d'une paroi Néel est :

$$N_{Néel} = \frac{D}{D + W} \quad (1.17)$$

$N_{Néel}$ devient inférieur au N_{Bloch} pour $W > D$. Ces arguments sont très qualitatifs et, en réalité, la transition entre deux types de parois, nommées symétriques, est associée à des structures plus complexes, mélange de parois de Bloch et de parois de Néel, nommées asymétriques [Aharoni_91][LaBonte_69][Hubert_75] [Scheinfein_91].

Une paroi de Néel symétrique est composée de trois parties: une partie centrale, le cœur très mince ou étroit qui continue avec deux parties plus larges : la queue de la paroi. La densité de charges magnétiques dans la partie centrale de la paroi est plus importante que dans la queue. L'énergie magnétostatique influence la largeur du cœur de la paroi et de la queue. Lorsque l'énergie magnétostatique augmente la largeur du cœur de la paroi décroît et la largeur de la queue augmente.

1.3.2.2 La structure interne d'une paroi dans les fils

Dans la partie qui suit, la structure magnétique des parois de domaines est discuté dans le cas d'un système particulier : les fils, système qui sera étudié plus en détail dans le chapitre 6. L'influence de deux paramètres sur la distribution de l'aimantation à l'intérieur d'une paroi est analysée. Ces deux paramètres sont : l'anisotropie magnétocristalline et la taille du système.

La particularité des fils est que à cause de leur forme allongée ils présentent une importante anisotropie de forme qui tend d'aligner l'aimantation le long du fil.

Le cas d'un fil sans anisotropie magnétocristalline a été analysé par McMichael [McMichael_97]. Il a identifié deux sortes de parois de domaines tête-bêche possibles dans des fils de Py. Du point de vue énergétique, dans les fils fins (taille latérale petite) et plats (de faible épaisseur), une paroi de type transverse est favorisée. Alors que, si les tailles latérales sont suffisamment larges pour qu'elles puissent laisser se développer une structure de type vortex, la paroi la moins énergétique est de type vortex. La structure de type vortex est transversale à l'axe du fil et possède une inhomogénéité relativement importante d'une surface latérale à l'autre (fig. 1.6).

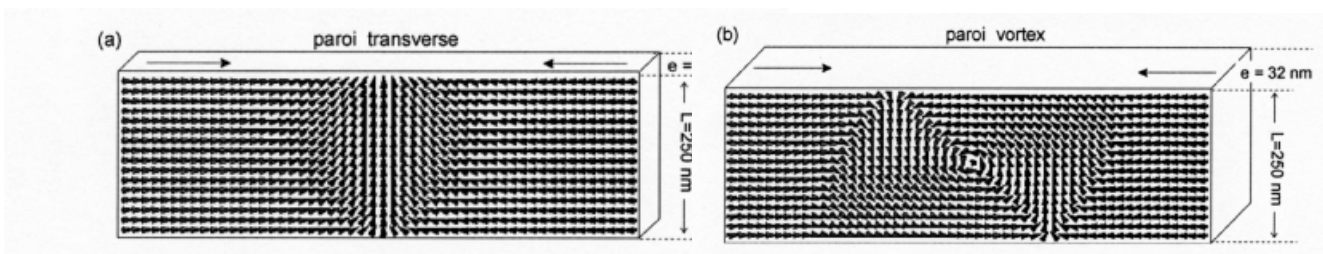


Fig. 1.6 a) Paroi transverse et b) paroi vortex obtenues dans des fils de NiFe en utilisant les paramètres de simulation $M_s = 8 \cdot 10^5 \text{ A/m}$ et $A_{ex} = 1.3 \cdot 10^{-11} \text{ J/m}$ [Buda_01]

La structure interne des parois dans des fils de section carrée, avec anisotropie magnétocristalline a été étudiée par Buda [Buda_01].

Lorsque l'axe de l'anisotropie magnétocristalline est parallèle à l'axe du fil, les parois s'approchent de la paroi de Bloch si la taille latérale du fil est de quelques l_{ex} . Dans les fils de taille latérale supérieur à $10l_{ex}$ une paroi de type vortex peut se développer.

Si l'axe d'anisotropie magnétocristalline est perpendiculaire à l'axe du fil, la structure en domaine a été présentée dans la section 1.3.1. En fonction de leur épaisseur et leur longueur, les fils préfèrent deux états : l'état monodomaine et l'état de domaines en bande qui est remplacé par l'état monodomaine suivant l'axe de l'anisotropie magnétocristalline dans la limite des fils très fins. Une caractéristique principale des parois qui séparent les domaines en bande est leur nature hybride. Vers le centre du fil les parois sont plutôt de type Bloch alors que proche des surfaces elles deviennent prépondérantes de type Néel. Cependant, les détails fins de leur structure sont liés à l'épaisseur du fil qui agit sur les effets magnétostatiques [Buda_01].

1.3.3 D'autres types d'inhomogénéités de l'aimantation : l'état vortex

Parmi les inhomogénéités de l'aimantation, mis à part les parois de domaines qui ont été discutées jusqu'à présent, on trouve le vortex qui sera analysé dans cette section.

L'état vortex a été mis en évidence pour la première fois dans des structures triangulaires [Tonomura_87]. Ces expériences ont été suivies par l'introduction et le contrôle d'un vortex dans une couche mince [Gillies_96] et par la visualisation d'un vortex dans des plots circulaires [Shinjo_00].

Dans une structure de type vortex l'aimantation tourne à l'intérieur du système de manière à fermer le flux magnétique et au centre elle sort hors du plan.

Nous allons passer en revue les causes de l'apparition du vortex dans des plots circulaires et quelques-unes de ses caractéristiques comme par exemple : la dépendance de la largeur du vortex en fonction de la taille du plot.

La formation d'un vortex dans un plot sans anisotropie magnétocristalline est le résultat de la compétition entre l'énergie d'échange et l'énergie magnétostatique. La minimisation de l'énergie d'échange implique une réorientation graduelle de l'aimantation

d'une direction dans le plan de l'échantillon, à une direction hors du plan. Une telle variation lente dans l'espace, induit l'apparition de charges magnétiques de surface significatives sur le plan inférieur et supérieur du plot. Ces charges augmentent considérablement la contribution magnétostatique à l'énergie totale du plot. Ainsi, pour de raisons magnétostatiques, le cœur du vortex doit être très étroit alors que l'interaction d'échange veut empêcher une variation brutale de l'aimantation sur une distance courte.

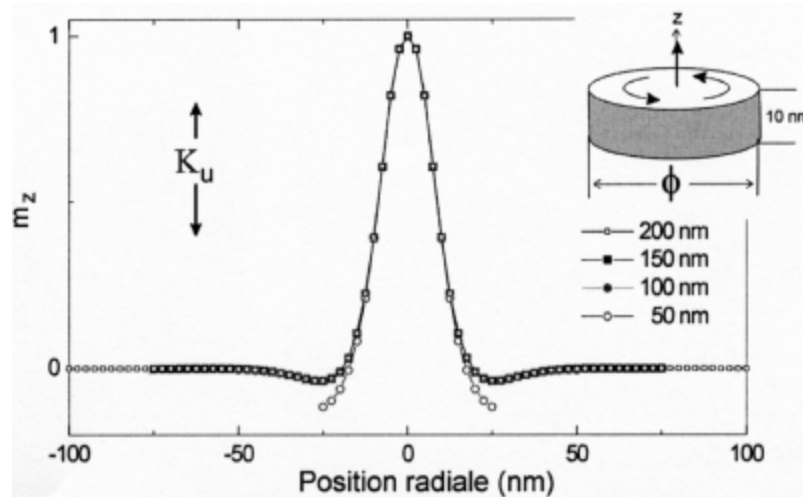


Fig.1.7 Profil du vortex en fonction du diamètre du plot, lorsque l'épaisseur est égale à 10nm et l'anisotropie magnétocristalline est considérée perpendiculaire au plot [Buda_01]

Des calculs micromagnétiques réalisés par L. Buda [Buda_01] ont montré qu'en réduisant le diamètre du plot, le cœur du vortex reste presque inchangé comme le prouve les profils de l'aimantation hors du plan m_z , représentés sur la fig. 1.7. Seule la région où l'aimantation est planaire $m_{xy}=1$ diminue lorsque le diamètre décroît. Dès que le diamètre du plot s'approche de la taille du cœur du vortex, pratiquement toute l'aimantation est orientée selon l'axe de symétrie OZ.

Au dehors du diamètre du plot beaucoup d'autres paramètres peuvent modifier la structure interne d'un vortex tels que : l'anisotropie magnétocristalline, la constante d'échange, l'aimantation à la saturation et le champ externe appliqué.

1.4. Les modes de retournement de l'aimantation

Le renversement de l'aimantation est un phénomène physique caractérisé par le franchissement d'une ou plusieurs barrières d'énergie liées aux propriétés magnétiques du matériau qui sont : l'aimantation à la saturation, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline et l'énergie d'échange.

En fonction des dimensions de l'échantillon, du type du champ appliqué et de sa direction il existe plusieurs types de renversement de l'aimantation :

1. le renversement uniforme
2. le renversement non- uniforme
3. le renversement par nucléation et propagation des parois.

1.4.1. Le cas du retournement uniforme

Le modèle de rotation cohérente de l'aimantation d'une particule ferromagnétique a été proposé en 1948 par Stoner et Wohlfarth [Stoner-Wohlfarth_48] [Néel_47]. Il suppose que la forme de la particule est ellipsoïdale de grand axe c et que l'aimantation reste uniforme, générant un champ démagnétisant homogène. Leur modèle permet de calculer le champ de retournement de l'aimantation en fonction de l'inclinaison du champ par rapport à l'axe c .

Examinons d'abord le cas où le champ externe est appliqué parallèle à l'axe c . Sous l'effet d'un champ inverse, l'aimantation reste parallèle à l'axe c , tant que l'énergie libre de la particule est minimale. Lorsque le champ appliqué atteint une valeur critique H_c , suffisamment forte pour estomper la barrière d'énergie, l'aimantation se renverse. Ce champ H_c est nommé champ de retournement de l'aimantation et est donné par :

$$H_c = -N_{eff} \cdot M_S \quad N_{eff} = N_{//} - N_{\perp} \quad (1.18)$$

où $N_{//}$ et N_{\perp} sont les facteurs de forme du champ démagnétisant respectivement dans la direction parallèle et perpendiculaire à l'axe c .

Le retournement de l'aimantation au champ coercitif est brutal et n'est précédée d'aucune rotation.

Si le champ est appliqué à un angle θ par rapport à l'axe c , le retournement d'aimantation est toujours brutal, mais précédé et suivi d'une rotation cohérente de l'aimantation en direction du champ. Le champ de retournement varie avec l'angle suivant la relation :

$$H_c(\theta) = \frac{H_a}{(\cos^{2/3} \theta + \sin^{2/3} \theta)^{3/2}} \quad (1.19)$$

Avec $H_a = (N_{//} - N_{\perp}) \cdot M_s$. Comme on peut voir, le champ de retournement est inférieur ou égale au champ d'anisotropie de forme H_a et atteint sa valeur minimale pour $\theta = \pi/4$.

Dans le cadre de ce modèle, la barrière d'énergie ΔE qui s'oppose au renversement est donnée par la différence des énergies entre l'état d'énergie maximale et l'état initial. Pour un champ appliqué dans la direction de l'axe c , la barrière ΔE est de forme :

$$\Delta E = \frac{1}{2} \cdot \mu_0 \cdot M_s^2 \cdot (N_{//} - N_{\perp}) \cdot \left(1 - \frac{H}{H_a}\right)^2 \quad (1.20)$$

1.4.1 Le cas du retournement non-uniforme

Dans ce type de renversement, les moments magnétiques ne tournent pas de manière uniforme. Le désalignement des moments magnétiques qui apparaît dans tout processus non-uniforme de retournement, conduit à une augmentation de l'énergie d'échange. La comparaison entre cette perte d'énergie et le gain éventuel d'un autre type d'énergie indique si le processus est plus favorable que la rotation cohérente.

Comme on considère des objets de haute symétrie, le gradient de l'aimantation locale au sein de la structure peut être décrit par un faible nombre de paramètres, ce qui autorise un traitement analytique et un calcul des champs de nucléation.

Les mécanismes de curling ou de buckling sont des exemples de retournement non-uniforme. Dans ces deux cas, le renversement peut être assez facilement modélisé pour des cylindres, des ellipsoïdes et des sphères [Aharoni_66] [Brown_57]. Par la suite on va se concentrer sur ces deux mécanismes de retournement dans le cas d'un cylindre.

Curling ou enroulement de l'aimantation

Ce mode respecte la symétrie cylindrique de la particule car le vecteur de l'aimantation a seulement une composante selon l'axe du cylindre et l'axe orthoradial. Cette distribution ne génère aucune charge de volume, ni de surface, et par conséquent, minimise complètement l'énergie démagnétisante. En revanche elle engendre un coût en énergie d'échange puisque l'aimantation n'est pas uniforme.

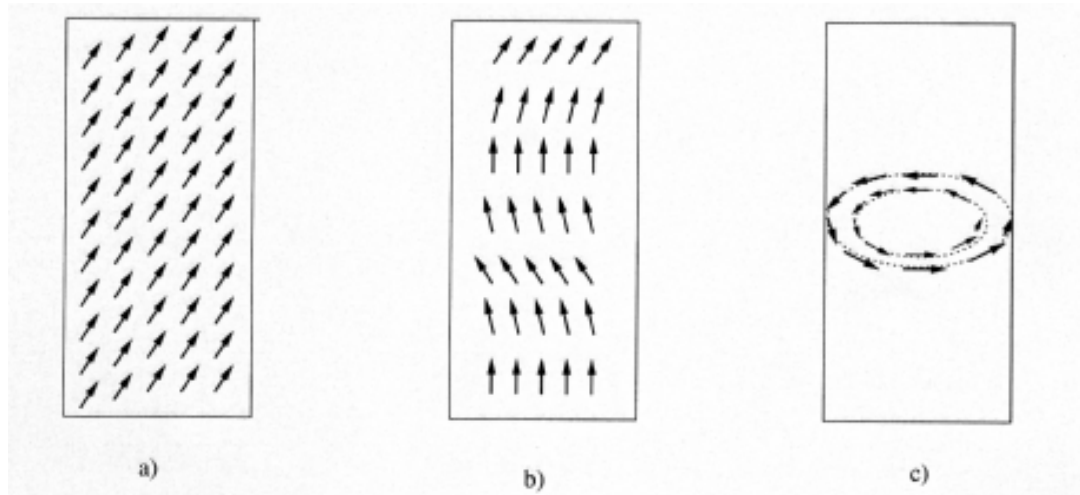


Fig.1.8 Modes de renversement possible dans une particule de forme cylindrique : a) rotation cohérente b) Buckling c) curling. Les flèches schématisent les spins à l'intérieur de la structure

Buckling ou flambage

La rotation uniforme et le curling sont des cas extrêmes, pour lesquels soit l'énergie d'échange soit l'énergie démagnétisante s'annule. A l'intersection de ces deux domaines, un autre mode, appelé buckling peut être favorisé (fig. 1.8).

Dans ce mode, l'aimantation effectue de petites oscillations autour de l'axe Oz avec une pulsation ω . Les charges de surface qui interviennent dans le calcul de l'énergie démagnétisante sont proportionnelles à ω , tandis que les charges volumiques, proportionnelles à ω^2 , peuvent être totalement négligées [Kevorkian_98].

Un récapitulatif des dépendances du champ de nucléation dans les différents modes en fonction du diamètre du cylindre est présenté sur la fig.1.9. Les champs sont indiqués en unités réduites par rapport au champ d'anisotropie de forme et les dimensions en unités de R_0 (la longueur caractéristique l_{ech}).

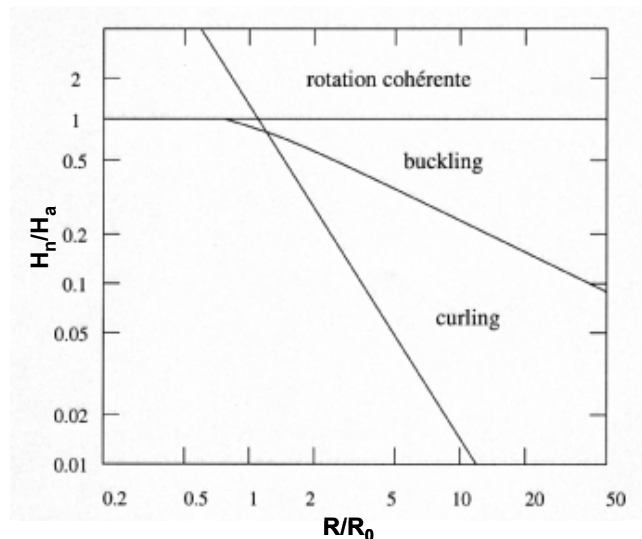


Fig. 1.9 Diagramme de phase des modes de renversement dans une particule cylindrique présentant le champ de nucléation réduit par rapport au champ d'anisotropie en fonction du diamètre réduit (r/r_0).

1.4.3. Renversement de l'aimantation par nucléation et propagation des parois

Ce type de mécanisme de renversement est caractéristique des matériaux magnétiques réels. Les matériaux réels sont constitués d'une assemblée de grains et présentent une structure hétérogène. Ces hétérogénéités structurales gouvernent le renversement d'aimantation parce qu'elles génèrent soit une distribution de barrières d'énergie, soit elles peuvent conduire à une diminution des barrières d'énergie d'anisotropie due aux interactions dipolaires.

Dans ces conditions, sous l'influence d'un champ inverse, le renversement d'aimantation à partir de l'état saturé est un mécanisme complexe qui est beaucoup influencé par les défauts qui existe dans le matériau. Le processus débute avec la nucléation d'un domaine d'aimantation inverse proche d'un défaut. La paroi créée pendant la nucléation se propage ensuite dans tout le système. Le comportement global du système au cours du renversement peut être divisé schématiquement en quatre étapes qui se succèdent et qui correspondent chacune à un mécanisme caractéristique avec un champ critique spécifique :

- nucléation pour un champ caractéristique H_n : formation d'un domaine d'aimantation inverse avec apparition d'une paroi dans une zone où l'anisotropie est la plus faible

- passage caractérisé par le champ H_p : dépiégeage de la paroi du défaut
- expansion pour un champ H_{exp} : progression de la paroi
- ancrage : accrochage de la paroi sur des défauts (hétérogénéités magnétiques) ou sur des pièges dus aux contraintes topologiques de la paroi. Un champ H_{dp} est nécessaire pour dépiéger la paroi.

Le renversement de l'aimantation est gouverné par le mécanisme dont le champ est le plus important.

1.5. Magnétisme des petites particules

Cette dernière partie du chapitre 1 est consacrée à l'étude de quelques propriétés magnétiques, comme par exemple le superparamagnétisme qui sont caractéristiques pour des particules de taille de l'ordre de la dizaine de nanomètres.

Le bilan énergétique et les domaines magnétiques

Dans le cas des petites particules il y a deux comportements complètement différents qui apparaissent : celui donné par les atomes de surface et celui donné par le cœur de la particule. Lorsque le cœur présente un comportement similaire à celui d'un matériau massif, la surface présente un désordre magnétique plus important. La compétition entre ces deux comportements va déterminer l'état fondamental de la particule.

Le formation de domaines magnétiques est elle aussi influencée par le volume de la particule. Quand le volume du système magnétique diminue, la taille de domaine diminue aussi [Hubert_98]. En dessous d'une certaine valeur critique du volume, le coût en énergie pour créer une paroi dépasse ce qu'on gagne par la réduction de l'énergie magnétostatique. Par conséquent le système ne va plus se diviser en petits domaines et il reste monodomaine.

Le renversement de l'aimantation

L'influence de la taille d'une particule, à une température fixée s'exerce aussi sur les mécanismes de renversement de l'aimantation.

Tout d'abord, dans le cas d'une particule de très grande taille (taille micronique) qui comporte plusieurs domaines magnétiques le retournement s'effectue par le déplacement des parois de domaines. Cela conduit à un champ coercitif peu élevé.

Ensuite pour une taille plus petite (taille nanométrique), la particule devient monodomaine et le retournement s'effectue par la rotation de l'aimantation impliquant un changement d'énergie magnétique important en raison de l'anisotropie qui défavorise certaines orientations intermédiaires. La coercivité est alors importante [Dimitrov_94].

Enfin, pour des tailles encore plus petites, les fluctuations thermiques ($K_B T$) l'emportent sur la hauteur de la barrière d'anisotropie ($K_{eff} V$). Dans ce cas la particule est dans un régime nommé superparamagnétique et comme le renversement de l'aimantation est très aisé le champ coercitif est nul.

Ce régime superparamagnétique correspond à un paramagnétisme de spin géant, somme de tous les spins parallèles contenus dans la particule. L'anisotropie de la particule constitue une barrière d'énergie $\Delta E = K_{eff} \cdot V$ séparant deux états d'orientations possibles du moment, donnés par les deux directions de l'axe facile. Le temps caractéristique du passage d'un minimum d'énergie à l'autre s'exprime de façon suivante:

$$\tau = \tau_0 \cdot \exp\left(\frac{K_{eff} \cdot V}{k_B \cdot T}\right) \quad (1.21)$$

où τ_0 est le temps caractéristique d'essai compris entre 10^{-13} et 10^{-9} s.

Suivant le temps caractéristique de la mesure, τ_{mes} , comparé à τ , deux situations sont possibles :

- si $\tau_{mes} > \tau$, la direction des moments fluctue au cours de la mesure et le comportement haute température de l'aimantation est superparamagnétique
- si $\tau_{mes} < \tau$, l'aimantation reste fixe pendant la mesure et les moments semblent bloqués

On définit pour un temps de mesure donné, la température de blocage comme la température limite entre ces deux situations :

$$T_B = \frac{K_{eff} V}{k_B \ln(\tau_{mes} / \tau)} \quad (1.22)$$

T_B est d'autant plus grande que la particule ou que la barrière énergétique est grande et que le temps caractéristique est court. Plus des détails sur la détermination de T_B sont donnés dans le chapitre 2.

Références bibliographiques du chapitre 1 :

- [Aharoni_66] A. Aharoni, "Magnetisation curling", Phys. Stat. Sol. **16**, 3 (1966)
- [Aharoni_91] A. Aharoni and Jakubovics, Phys. Rev. B **43**, 1290, (1991)
- [Aharoni_96] A; Aharoni, "Introduction to the theory of ferromagnetism, Clarendon Press", Oxford (1996)
- [Bagnérés_91] A. Bagnérés- Viallix, P. Bara, IEEE Trans. Magn. **27**, 3819 (1991)
- [Belliard_94] L. Belliard, J. Miltat, V. Kottler, J. Appl. Phys **81**, 5315 (1997)
- [Bloch_32] Bloch, Z Phys **74**, 295-335 (1932)
- [Bochi_95] G. Bochi, H.J.Hug, D.J. Paul, B. Stifel, Phys. Rev. Lett. **75**, 1839 (1995)
- [Brown_57] W.F.G. Brown, "Magnetisation curling", Phys. Rev. **105**, 1479 (1957)
- [Brown_63] Brown, Jr "Micromagnetics, Interscience Publishers", J. Wiley and Sons, NY 1963
- [Buda_01] L. Buda, « Développement d'un code de calcul micromagnétique 2D et 3D : application à des systèmes réels de types films, plots et fils », thèse Univ. L. Pasteur, Strasbourg (2001)
- [Castro_00] J. Castro, G.A. Gehring, S.J. Robinson, J. Magn. Magn. Mat **214**, 85 (2000)
- [Cowburn_98] R. Cowburn, A. O. Adeyeye, M.E. Welland, Phys. Rev. Lett., **81**, 5414 (1998)
- [Dimitrov_94] D.A. Dimitrov, G.M. Wysin, Phys. Rev. B **50**, 3077, (1994)
- [Gilbert_55] T. Gilbert, Phys Rev **100**, 1243, (1955)
- [Gillies_96] M.F. Gillies, J. N. Chapman, J. C. S. Kools, J. Magn. Magn. Mat.

- 61**, 17 (1996)
- [Fredkin_87] D. R. Fredkin, T.R. Koehler, IEEE Trans. Magn. Mag. **23**, 3385 (1987)
- [Hehn_96] M. Hehn, K. Ounadjela, R. Ferré, W.Grange, F.Rousseaux, C. Chappert, Science, **272**, 1782 (1996)
- [Hubert_69] A. Hubert, Phys Stat Sol **32**, 519 (1969)
- [Hubert_70] A. Hubert, Phys Stat Solidi **38**, 699 (1970)
- [Hubert_75] A.Hubert, IEEE Trans. Magn. Mag. **11**, 1285, (1975)
- [Hubert_98] A. Hubert and R. Schafer, “Magnetic domains”, Springer- Verlag Berlin, (1998)
- [Kevorkian_98] B.M. Kervorkian, « Contribution à la modélisation du retournement de l'aimantation. Application à des systèmes magnétiques nanostructurés ou des dimensions réduites », thèse Univ. J. Fourier, Grenoble (1998)
- [LaBonte_69] A.E. LaBonte, J. Appl. Phys. **40**, 2450 (1969)
- [Landau_35] L.Landau and E.Lifshitz,Phys Z Sowjetunion **8**, 153 (1935)
- [Kittel] Kittel, Solid State Physics 3, ed. by F.Seitz , pp 437-565
- [Nakatani_89] Y. Nakaki, Y. Uesaka, J. Appl. Phys. **28**, 2485 (1989)
- [Néel_47] L. Néel, C.R. Acad. Sci. Paris **224**, 1550 (1947)
- [Néel_55] L. Néel C.R. Acad. Sci. Paris **241**, 533, (1955)
- [McMichael_97] R.D. McMichael, M.J. Donahue, IEEE Trans. Magn., **33**, 4167 (1997)
- [Miltat_94] J.Miltat, “Applied Magnetism” édité par R. Gerber, C.D. Wright et G. Asti, NATO ASI Series (Kluwer, Dordrecht), 221 (1994)

Chapitre 1 : Le magnétisme d'un système ferromagnétique

- [Morr_65] A.H. Morrish, "The physical principles of magnetism", J. Wiley & Sons, Inc(1965)
- [Ramstock_96] K. Ramstock, W. Hartung, Phys. Stat. Sol. A **155**, 505 (1996)
- [Stoner-Wohlfarth_48] E.C. Stoner and E.P. Wohlfarth, Philos. Trans. London Ser A, 240, 599 (1948), reprinted in IEEE Trans. Magn Mag. **27**, 3475 (1991)
- [Schabes_88] M.E.Schabes, H. N. Bertram, J. Appl. Phys. **64**, 1347 (1988)
- [Scheinfein_91] R. Scheinfein, J. Unguris, J.L. Blue, Phys. Rev. B **43**, 3395, (1991)
- [Schrefl_99] T. Schrefl, J. Magn. Magn. Mat. **207**, 45 (1999)
- [Shinjo_00] T. Shinjo, T. Okuno, R. Hassdorf, K. Shigeto, T. Ono, Science, **289**, 930 (2000)
- [Tonomura_87] A .Tonomura, Rev. Mod. Phys. **59**, 639 (1987)
- [Weiss_07] P. Weiss, J de Phys Rad **6**, 661 (1907)

Chapitre 2 : Elaboration et de caractérisation des échantillons

2.1. Introduction	34
2.2. Méthode expérimentale d'élaboration des échantillons	35
2.2.1 Pulvérisation cathodique	35
2.1.1.1 Recuit ex-situ	40
2.2.2 Les techniques de préparation des réseaux de plots	40
2.2.2.1 La nano- impression	40
2.2.2.2 La lithographie électronique et la gravure	41
2.2.3 L'électrodéposition des fils de Co	43
2.3 Caractérisation structurale des échantillons	45
2.3.1 Microscope électronique par transmission (TEM)	45
2.4. Caractérisation magnétique des échantillons	48
2.4.1 Le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)	49
2.4.2 SQUID (Superconducting Quantum Inteferometer Device)	50
2.4.3 L'effet Kerr magnéto-optique (MOKE)	52
2.4.4 Microscope à force magnétique (MFM)	54
Références bibliographiques du chapitre 2	58

2.1. Introduction

Ce chapitre présente une description des techniques expérimentales utilisées pendant mon travail de thèse. Il est divisé en trois sections: la première section décrit les techniques nécessaires pour préparer les échantillons, la deuxième section est consacrée aux techniques qui permettent leur caractérisation du point de vue structural et la troisième contient les techniques de caractérisation magnétique.

Les techniques de préparation qui seront décrites dans la première section concernent la fabrication des systèmes étudiés pendant cette thèse, qui sont: les nanoparticules, les plots et les nanofils.

Pour la préparation du premier système, les nanoparticules, il est nécessaire d'évaporer une couche mince continue sur un substrat de SiO_2 qui sera ensuite irradiée par un faisceau d'électrons. La technique qui a été utilisée pour le dépôt de la couche mince est la méthode de pulvérisation cathodique. Nous allons commencer par la description de cette méthode.

Concernant le deuxième système, les plots circulaires et carrés, il y a différentes méthodes qui peuvent être utilisées pour leur préparation. Parmi ces méthodes, la nano-impression a été utilisée pour la fabrication des systèmes de plots circulaires. Les plots ont été préparés au laboratoire LPN, Bagneux, par M. Natali. Nous allons présenter quelques notions de base concernant cette méthode. Une autre méthode, utilisée pour la préparation des plots carrés, est la lithographie suivie d'une gravure du substrat et du dépôt du matériau magnétique. Ces plots ont été réalisés au LETI/CEA Grenoble. Nous allons décrire brièvement chacune de ces étapes.

Le troisième type de particules étudié sont les systèmes cylindriques (fils). Il existe plusieurs méthodes pour leur préparation: nanolithographie [Matsui_00], l'électrodéposition [Arrai_89]. Les fils que nous avons analysés ont été réalisés par la méthode d'électrodéposition du Co dans les pores d'une membrane polycarbonée. Leur préparation a été réalisée par le groupe du professeur L.Piroux, du Laboratoire PCPM, Belgique et elle sera détaillée par la suite dans ce chapitre.

La deuxième section contient une description de la technique qui nous a permis la caractérisation structurale de nos échantillons. Les fils ont été le seul système qui a nécessité une caractérisation structurale approfondie. Ceci est une étape absolument nécessaire pour l'optimisation de leur croissance. Cette caractérisation a été réalisée par microscopie

électronique à transmission (TEM). Les observations TEM ont été réalisées en collaboration avec P. Bayle, du Laboratoire CEA/DFRMC/SP2M Grenoble.

La dernière section introduit les techniques qui nous donnent des informations sur les propriétés magnétiques des échantillons. Tous les systèmes étudiés ont nécessité une caractérisation magnétique.

Les propriétés magnétiques des couches minces et des nanofils électrodéposés ont été étudiées à l'aide du magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) et du SQUID (Superconducting Quantum Interferometer Device). Une technique complémentaire utilisée pour la caractérisation des réseaux de plots a été la magnétométrie à effet Kerr (MOKE). Cette section contient également une description du microscope à force atomique (AFM) et magnétique (MFM) qui nous a permis d'obtenir des informations sur la morphologie des couches minces, sur la structure en domaines des nanofils, ainsi que la distribution de l'aimantation dans des réseaux de plots carrés et circulaires.

2.2 Méthode expérimentale d'élaboration des couches minces

2.2.1. Pulvérisation cathodique

Les techniques d'élaboration des couches minces peuvent être classées en deux grandes catégories [Chopra_97]:

1. méthodes physiques : le dépôt résulte de l'éjection d'atomes depuis une cible puis de leur transfert vers le substrat. Le matériau constituant la cible peut être évaporé par chauffage à l'aide d'un filament ou par évaporation laser.
2. méthodes chimiques : le film mince est directement formé par une réaction chimique (oxydation, réduction, nitruration ...) localisée à la surface du substrat à partir d'une phase liquide ou gazeuse.

La technique que nous avons utilisée pendant cette thèse pour préparer des couches minces de Co est la pulvérisation cathodique qui appartient à la première catégorie.

La pulvérisation cathodique est une technique de dépôt couramment utilisée qui consiste à bombarder le matériau cible par les ions accélérés d'un plasma. Cette technique est basée sur le transfert de moment entre les ions incidents et les atomes du réseau cristallin. Le taux de

pulvérisation cathodique dépend de la masse des ions autant que de leur vitesse et il est très sensible à l'angle d'incidence des ions [Giacomoni_98][Mevel_97] [Cowache_95].

Ce procédé s'applique à tout type de matériau : simple ou composé, conducteur ou diélectrique. De même, le substrat peut être indifféremment conducteur ou diélectrique à condition de résister aux conditions peu restrictives du procédé : mise sous vide et léger échauffement.

Il existe différentes variantes et améliorations de la pulvérisation cathodique :
a) configuration cathodique : dans ce cas le substrat joue le rôle d'anode et la cible est la cathode. Après le pompage de la chambre où se trouvent la cible et le substrat face à face, on introduit de l'argon. Une tension continue est appliquée ensuite, ce qui provoque à une décharge électrique entre cathode et anode et conduit à la création d'un plasma.

Les ions positifs sont extraits du plasma par application d'une tension négative à la cathode et viennent bombarder la cible. Pendant ce temps, les électrons se déplacent vers l'anode et entretiennent le plasma. Afin qu'une telle décharge soit entretenue, chaque électron primaire du plasma doit produire suffisamment d'ions pour provoquer l'émission d'un électron secondaire de la cible. Pour cette raison, l'espace entre les deux électrodes doit être grand par rapport au libre parcours moyen des électrons. Or, à une pression de $1 \cdot 10^{-3}$ Torr d'argon (densité de gaz de $3,2 \cdot 10^{13}$ atomes/cm³) le libre parcours moyen d'un électron ionisant est de 300 cm, donc beaucoup plus grand que l'espace entre électrodes. Cela explique pourquoi le plasma ne peut être entretenu que pour des pressions d'argon suffisamment élevées ($5 \cdot 10^{-2}$ Torr à $1 \cdot 10^{-1}$ Torr), ce qui assure une probabilité de collision suffisante.

La vitesse de condensation sur le substrat et l'énergie moyenne des atomes éjectés de la cible, qui y arrivent, sont réduites par les collisions de ces atomes avec les atomes du gaz. A cause de ces collisions la vitesse de dépôt sera ralentie et un échauffement du substrat est possible, substrat qui est bombardé par des particules de haute énergie (électrons, atomes, ions négatifs). Ce bombardement pendant le dépôt peut conduire à des différences importantes de composition, à des défauts structuraux et à la détérioration des propriétés cristallographiques et magnétiques.

b) configuration triode : dans ce mode de dépôt, les électrons, servant à entretenir le plasma, sont créés par une seconde cathode indépendante de la cible. Ces électrons sont dirigés vers la cible à l'aide d'une anode accélératrice et d'un champ magnétique. Il est alors possible

d'abaisser considérablement la pression de travail (jusqu'à quelques 10^{-4} mbar) puisque le processus de pulvérisation de la cible et d'entretien du plasma sont maintenus découplés.

c) configuration magnétron : c'est en fait une configuration de type cathodique dans laquelle des aimants permanents sont placés sous la cible et constituent un piège à électrons. Ces aimants, en créant un champ magnétique parallèle à la cathode, confinent les électrons du plasma au voisinage de la cible du fait de la loi de Lorentz :

$$\vec{F} = -e \cdot \vec{v} \times \vec{B} \quad (2.1)$$

Les électrons se déplacent dans une direction qui est à la fois perpendiculaire au champ électrique et au champ magnétique, selon des trajectoires qui sont cycloïdales. Ils acquièrent donc une énergie plus grande et surtout parcourent des distances beaucoup plus grandes, que dans les techniques précédentes. Les collisions ionisantes seront beaucoup plus nombreuses, les densités de courant ionique sur la cible étant alors plus importantes aussi. Les plasmas intenses ainsi créés, permettent d'obtenir des vitesses de pulvérisation élevées, à des pressions assez basses. Ils permettent donc d'accroître la vitesse de dépôt et de limiter l'échauffement du substrat.

Il convient également de distinguer deux modes de pulvérisation cathodique : du courant continu (DC) et radiofréquence (RF). Le mode DC (exposé précédemment), ne permet pas de pulvériser de cibles diélectriques. En effet, les matériaux diélectriques ne peuvent évacuer l'excès de charge et l'accumulation de charges positives en surface écrante progressivement le champ électrique créé par la différence de potentiel. Et par conséquent cela détruit le plasma. Pour remédier cet inconvénient, la tension continue appliquée à la cible est remplacée par une tension alternative. De ce fait, durant les demi périodes de tension négative, les électrons sont attirés vers la cible tandis que les ions positifs sont repoussés, rétablissant ainsi l'équilibre électrostatique nécessaire à la pulvérisation. Du fait de la différence de mobilité des ions et des électrons, la tension résultante n'est pas nulle, mais légèrement négative puisque les électrons sont plus rapidement attirés par la cible que les ions.

Description de l'enceinte de pulvérisation PLASSYS

Le bâti utilisé lors de l'élaboration de nos échantillons a été fabriqué par l'entreprise Plassys, et est du type magnétron. Tous les dépôts ont été effectués au Laboratoire Louis Néel, Grenoble.

Ce dispositif est constitué:

- d'une enceinte ultravide sous pompage cryogénique ($5 \cdot 10^{-8}$ torr)
- d'un sas de transfert
- de quatre paires de cibles face-à-face
- d'un porte substrat chauffant (7K et 670 K)
- d'un quadripôle pour contrôler le dépôt sous plasma réactif
- d'un système d'introduction d'azote liquide dans la chambre de dépôt pour refroidir le porte substrat jusqu'à 160 K

Dans la méthode de pulvérisation cathodique avec les cibles face-à-face, les surfaces à pulvériser de deux cibles de même taille, se trouvent parallèles l'une en face de l'autre (fig.2.1). Cette configuration évite que tout le flux magnétique du système magnétron ne passe dans la cible magnétique.

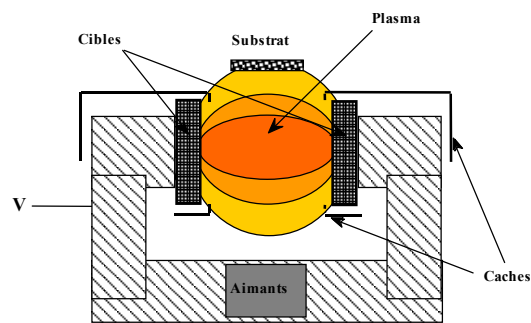


Fig 2.1 Configuration des cibles face-à-face

Un champ magnétique est appliqué perpendiculairement à la surface des cibles afin de confiner les électrons secondaires et de concentrer le plasma dans l'espace compris entre les plans des cibles. Comme le confinement des électrons secondaires renforce l'ionisation du gaz dans l'espace entre les cibles et augmente le nombre d'ions pulvérisants, la vitesse de pulvérisation augmente et conduit à des taux de dépôt plus élevés.

Les cibles sont collées sur des socles en acier inoxydable, fer ou cuivre et les paires sont montées verticalement face à face à une distance de 3 cm l'une de l'autre. La porte cible tournant prévoit des emplacements pour quatre paires de cible. Quatre substrats d'un diamètre maximal de 2 cm peuvent être fixés sur un porte-substrat en forme d'anneau qui se trouve placé à l'horizontale à environ 50 cm au dessus des cibles. Pendant le dépôt le substrat est placé à 20 cm au dessus des cibles pulvérisées. Le tout est enfermé dans une enceinte maintenue sous vide (pression de base $5-6 \cdot 10^{-8}$ mbar) par une pompe cryogénique (fig.2.2).

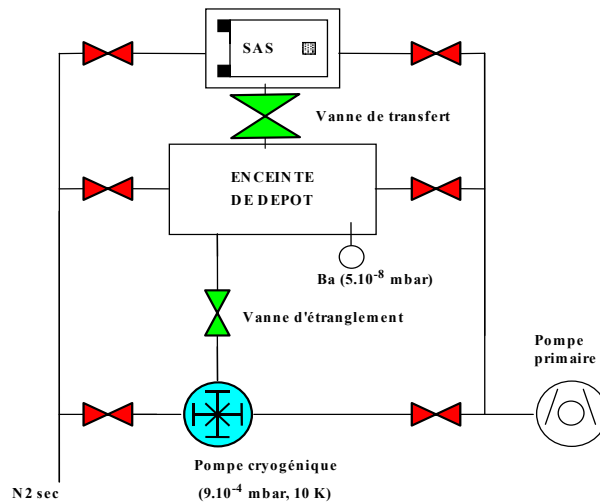


Fig. 2.2 Schéma de la chambre du dépôt

Pour amorcer le processus de dépôt la chambre est mise sous atmosphère de gaz inerte, en introduisant de l'argon, dont la pression est fixée par le degré d'étranglement d'une vanne de régulation. Ce gaz est ionisé par l'application d'une forte tension et les ions positifs ainsi libérés bombardent les cibles. Ces ions vont arracher de la matière qui va ensuite se déposer sur le substrat. Le plasma formé par cet ensemble de particules n'est entretenu bien sûr qu'au dessus d'une pression critique assurant un taux de collisions efficaces.

L'appareillage est conçu pour une variation contrôlée de la température des substrats pendant le dépôt.

Nous avons déposé des couches de Co avec une épaisseur qui varie dans l'intervalle 7\AA - 40\AA . Afin d'assurer une meilleure qualité de la couche, les paramètres des dépôt comme la vitesse de dépôt et la pression d'argon ont été variés. Les paramètres optimaux trouvés et qui ont été utilisés pendant le dépôt sont : $v_{\text{dépôt}} = 1 \frac{\text{\AA}}{\text{s}}$ et la pression d'Ar est de $3 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$.

Pour la préparation de nos nanoparticules un dépôt à basse température a été nécessaire afin d'obtenir un meilleur mouillage du Co sur le substrat de SiO_2 . Le dépôt à basse température a été réalisé par l'introduction d'azote liquide à l'intérieur de l'enceinte de dépôt. La température est mesurée au niveau du porte-échantillon.

2.2.1.1. Recuit ex-situ

Pour les couches de Co/SiO₂ dédiées à la fabrication des nanoparticules, nous avons effectué des recuits afin de déterminer la température qui conduit à la coalescence des couches en îlots.

Ces recuits thermiques ont été réalisés à l'aide d'un four commandé par un thermostat Eurotherm au CEA/DRFMC Grenoble. La procédure de recuit se pratique en plusieurs étapes :

- Etablissement du vide à 10^{-5} torr,
- Augmentation de la température jusqu'à 60°C et attente pour que la pression redescende à 10^{-5} torr,
- Montée à la température de consigne (entre 15 et 45 min) et palier chronométré de 30 min,
- Enfin, simultanément, coupure de l'alimentation du four et ouverture d'une circulation d'azote gazeux pour le refroidissement à température ambiante (~40 min)

2.2.2. Les techniques de préparation des réseaux des plots

La principale technique d'élaboration de plots des dimensions submicroniques est la lithographie. Selon la nature du matériau à structurer et du motif à inscrire, différentes techniques de lithographie peuvent être utilisées.

Pour la fabrication des plots, deux techniques de lithographie ont été utilisées :

1. la nano- impression pour la fabrication des réseaux de plots circulaires.
2. la lithographie électronique suivie par une gravure pour la fabrication des réseaux de plots carrés

2.2.2.1 La nano- impression

La nano- impression fait partie des techniques de lithographie qui nous permet de lithographier de grandes régions de l'échantillon avec une haute résolution. Des résolutions inférieures à 10nm ont pu être atteintes [Chou_98]. Un autre avantage de la méthode de nano- impression est la rapidité pour lithographier.

La nano- impression est une technique de lithographie qui a été proposée par S. Chou en 1995 [Chou_95]. Son principe de fonctionnement est basé sur les propriétés thermoplastiques des polymères et non pas sur leur interaction avec un faisceau de particules chargées, comme c'est le cas dans la lithographie électronique. La couche de polymères thermoplastiques déposée sur le substrat est déformée physiquement avec un moule, fabriqué au préalable par lithographie électronique.

Le processus de fabrication est divisé en plusieurs étapes qui sont présentées dans la fig. 2.3. Dans la première étape, la couche de polymère est déposée sur le substrat. Le moule et le substrat sont ensuite chauffés à une température supérieure à celle de la transition vitreuse du polymère. Le moule est alors pressé contre la couche de polymère avec une pression d'environ 50 bar (1).

Après le pressage, le système est refroidi (2).

Les motifs du moule imprimés dans la couche du polymère doivent donner un contraste d'épaisseur raisonnable pour la suite du processus de fabrication.

Le transfert des motifs imprimés dans l'épaisseur totale de la couche de polymère est assuré par une étape de gravure ionique (3).

Un lift-off est effectué par la suite : une couche métallique mince est déposée (4), puis le polymère est dissout (5).

Plus de détails concernant les paramètres utilisés pendant le processus de fabrication sont présentés dans [Chen_00]. Cette méthode a été utilisée pour la fabrication des réseaux de plots circulaires étudiés dans le cadre du chapitre 3.

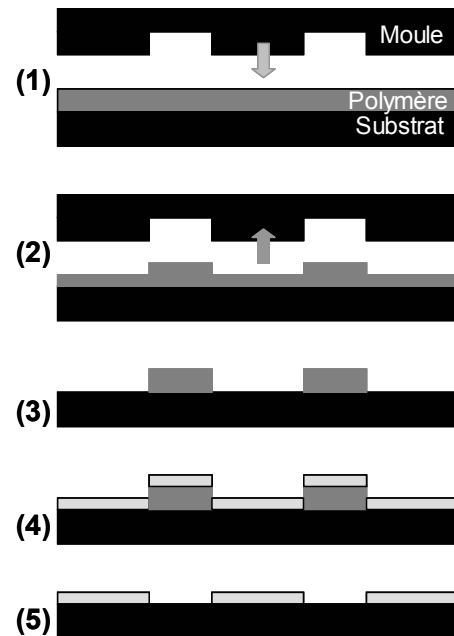


Fig. 2.3 Les étapes du processus de fabrication des nano- objets par nano- impression

2.2.2.2 La lithographie électronique suivie par la gravure ionique

La lithographie électronique est une technique qui permet de réaliser des motifs complexes et de haute résolution. Son principal inconvénient sera la dimension réduite de la région que l'on peut lithographier. En effet, l'insolation de vastes régions avec une haute

résolution requiert des durées d'exposition supérieures au temps de stabilité du faisceau d'électrons.

La lithographie électronique consiste à balayer un faisceau d'électrons, d'énergie comprise entre 1 et 200keV afin de dessiner un motif dans une résine sensible à l'irradiation électronique, recouvrant le matériau à structurer. Dans notre cas le motif est constitué de plots de 200nm de taille latérale séparés par différentes distances. Un appareil de lithographie électronique est typiquement constitué d'une colonne, semblable à celle d'un microscope électronique à balayage, équipée d'un système de déflection électrostatique du faisceau et d'un dispositif de micro- déplacement de la platine porte- échantillon, contrôlé par interférométrie laser [Matsui_00]. La résolution de cette technique dépend :

1. de la taille du spot électronique au niveau de la résine et de la diffusion et retrodiffusion des électrons à l'intérieur de cette dernière qui entraîne un étalement de la zone éclairée [Chen_94]
2. du choix des résines et des conditions de révélation.

Après que le motif est dessiné dans la résine, la deuxième étape est la gravure. Pour préparer nos réseaux prégravés de plots, la gravure ionique a été utilisée.

La gravure ionique permet le transfert du motif de résine dans la couche de matériau, par le bombardement de la surface avec un faisceau d'ions argon en incidence normale sur la surface à graver. Les collisions élastiques entre les ions incidents et les atomes de la surface éjectent un grand nombre d'atomes de la surface du matériau bombardé.

La chambre de gravure ionique contient deux anodes, un filament (d'habitude Tungstène), deux grilles et l'échantillon. Le gaz utilisé pour la création du plasma est l'Ar.

Le filament chauffé émet des électrons qui sont accélérés vers l'anode. Dans des conditions spécifiques de pression, un plasma est créé par l'ionisation de l'Ar. Les ions vont se déplacées vers la partie opposée au filament, partie qui contient les deux grilles. La première a une polarité positive qui va empêcher les ions de pénétrer dans la grille. Les ions peuvent passer seulement par les trous de la grille et ils seront accélérés après le passage par la deuxième grille qui est mise à un potentiel négatif. Le faisceau obtenu ainsi est parallèle et focalisé sur l'échantillon. La vitesse de gravure dépend beaucoup du type du matériau qu'on veut graver.

La gravure ionique possède l'avantage de créer des flancs quasiment verticaux en raison de la direction des ions et de leur grande énergie cinétique.

Les substrats prégravés avec le motif voulu sont ensuite couverts par pulvérisation cathodique (voir section 2.21) d'une couche de matériau magnétique (fig. 2.4).

Cette approche originale de réalisation de nanostructures magnétiques sur des substrats prégravés a été proposée pour la première fois par Ichihara [Ichihara_90] qui a fabriqué ainsi des réseaux de lignes. Gadetsky [Gadetsky_94] [Gadetsky_96] a également utilisé ce procédé pour la réalisation de réseaux de plots de taille micronique, pour étudier l'effet des tranchées et des flancs des régions gravées sur le piégeage des parois.

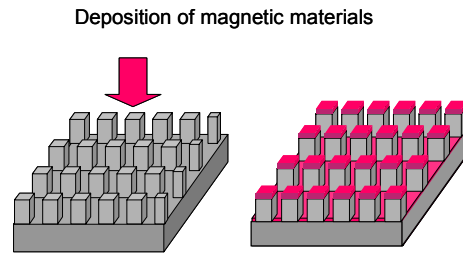


Fig.2.4 Image d'un réseau des plots obtenu par la déposition d'une couche continue sur un substrat prégravé

L'avantage de cette méthode de préparation consiste dans le fait que le dépôt de la couche mince s'effectue après l'étape de gravure du substrat, évitant ainsi l'endommagement de la couche magnétique par une étape technologique.

Cette méthode a été utilisée pour la fabrication des réseaux des plots carrés étudiés dans le cadre du chapitre 4.

2.2.3 L'électrodéposition des fils de Co

La troisième catégorie d'échantillons étudiés pendant cette thèse sont les fils de Co (voir chapitre 6). Plusieurs méthodes d'élaboration des fils se sont développées au fil des années : la lithographie [Matsui_00], électrodéposition [Arrai_89]. Les fils que nous allons étudier ont été préparés par l'électrodéposition par le groupe de prof. L. Piraux du laboratoire PCPM/ Louvain, Belgique. Cette méthode consiste à déposer d'un matériau magnétique dans les pores d'une membrane polycarbonée.

La méthode d'électrodéposition nous permet d'obtenir des fils très bien définis avec un diamètre qui varie entre 15 nm et quelques μm et une longueur maximum 22 μm . La dimension et la forme des fils (diamètre, longueur) dépendent des différents paramètres qui caractérisent la membrane : la dimension des pores, leur forme et densité.

La membrane est obtenue à partir d'un film polycarbonate qui a été bombardé par des ions lourds d'Ar avec une grande énergie, ions accélérés à 220 MeV dans un cyclotron. L'irradiation est faite sous vide et à la température ambiante. Cette irradiation provoque la formation de traces où les chaînes de polymère ont été brisées. Le flux des ions est perpendiculaire à la surface du film pour assurer la formation de traces parallèles entre elles

ou avec une faible déviation. Le film polycarbonate défile à une vitesse constante devant le flux des ions. Cette vitesse ainsi que le débit des ions déterminent la densité des pores.

Le film irradié est gravé dans des conditions adéquates conduisant à la formation des pores avec un diamètre qui dépend du temps de gravure. Le diamètre des pores va déterminer le diamètre des fils. Les membranes que nous avons utilisées sont fabriquées au laboratoire POLY de l'Université Catholique de Louvain.

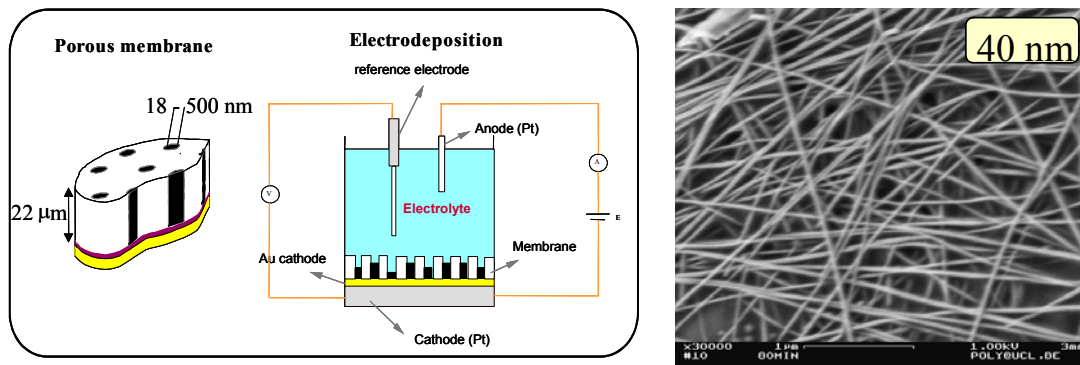


Fig. 2.5 a) La description schématique du processus de préparation des fils de Co par l'électrodéposition du matériau magnétique dans les pores d'une membrane b) Image MEB d'un système des fils après la dissolution de la membrane

Une couche mince d'or est déposée ensuite sur un côté de la membrane qui va servir de cathode [Fert_99]. L'épaisseur minimale de cette couche dépend du diamètre des pores, en général elle est égale à trois fois le diamètre des pores pour boucher les pores et pour créer une couche continue. La membrane poreuse est introduite dans un bain électrolytique. Le pH de la solution utilisée comme électrolyte est tenu constant pendant le dépôt parce que sa variation peut conduire à la variation des propriétés structurales. Cette solution contient aussi des ions du métal à déposer. En appliquant une différence de potentiel, le matériau magnétique est déposé dans les pores de la membrane. La différence de potentiel est différente en fonction du métal à déposer. Pendant le dépôt, on mesure la variation du courant entre l'anode et la cathode. Elle a une valeur constante qui commence à augmenter seulement quand les fils commencent à déborder (fig. 2.5a).

Comme l'étude du comportement d'un seul fil isolé s'est avérée très intéressante, une méthode qui permette d'isoler les fils de la membrane a été développée. Cette méthode consiste dans la dissolution de la membrane dans une solution de dichlorméthane à l'aide d'un bain ultrasonique. Ainsi on obtient une solution de dichlorméthane et des fils. Avec l'aide d'une pipette on dépose de la solution sur le substrat choisi (fig. 2.5b) en fonction du

type de mesure qu'on souhaite effectuer : pour des mesure TEM sur des gilles de cuivre ou de SiN et pour des mesures MFM sur du Si ou des grilles de SiN.

2.3 Caractérisation structurale des échantillons

2.3.1. Microscope électronique à transmission (TEM)

Le premier TEM a été conçu en 1931 par Ernst Ruska. Son principe de fonctionnement est analogue avec celui d'un microscope optique mais il utilise un faisceau d'électrons pour obtenir l'image de l'échantillon. Comme les électrons ont une longueur d'onde plus petite que celle de la lumière, ils permettent de visualiser des structures beaucoup plus petites que celle étudié en lumière visible. Les principales composantes d'un microscope TEM sont présentées dans la figure 2.6.

Le canon à électrons est constitué d'un filament de LaB_6 (rôle d'émission des électrons), un cylindre de Wehnelt (rôle de focalisation du faisceau des électrons), une anode (rôle d'accélération).

A la sortie du canon, le faisceau d'électrons va passer par un système de lentilles magnétiques. Les lentilles magnétiques sont pour les électrons l'équivalent des lentilles optiques pour les rayons lumineux. Une lentille magnétique est en effet une bobine qui crée un champ B, champ qui va déterminer la focalisation du faisceau d'électrons.

Il est important de remarquer que pour la focalisation des électrons on utilise plusieurs lentilles magnétiques ayant chacune un différent rôle :

- les lentilles condenseur qui assurent le transfert du faisceau d'électrons entre le canon et l'échantillon (responsable des conditions d'éclairement)
 - la lentille objectif est la lentille la plus importante, car elle donne la première image agrandie de l'échantillon
 - les lentilles intermédiaires et projectives reprennent plusieurs fois l'image délivrée par l'objectif en l'agrandissant en plusieurs étapes afin de la visualiser sur l'écran d'observation.
- Il ne faut pas oublier dans tout ce système « optique », les diaphragmes placés le plus souvent

derrière les lentilles, qui permettent de sélectionner le faisceau d'électrons en partie ou en totalité.

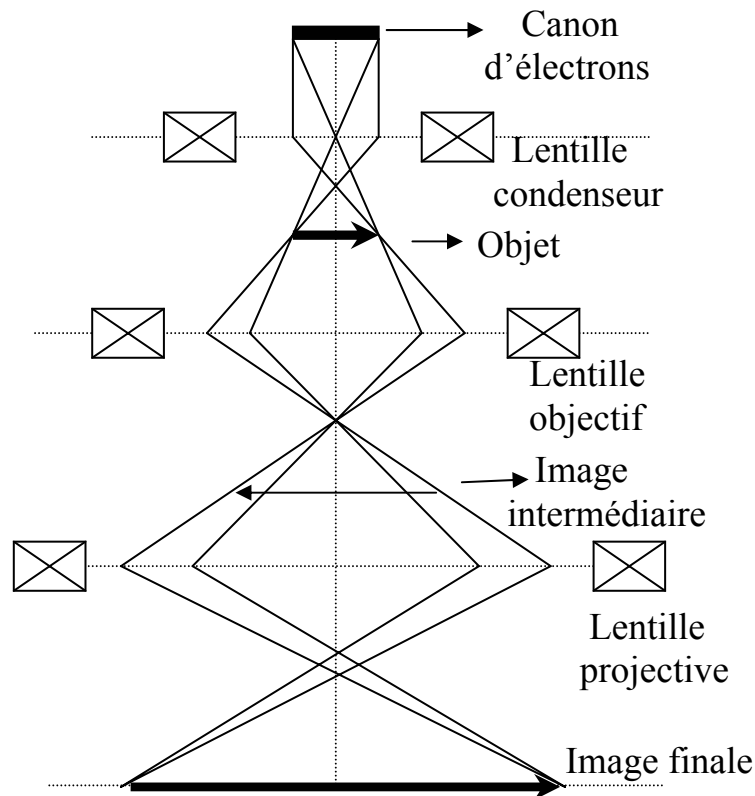


Fig. 2.5 Formation d'une image dans un microscope électronique par transmission

L'écran fluorescent est le dernier élément de la colonne, se trouvant dans la chambre de projection. Il permet l'observation de l'image finale et est constitué d'une poudre phosphorescente qui émet de la lumière dans la gamme jaune-verte sous l'impact des électrons. Afin de garder la trace de l'image obtenue, on utilise un support photo. Ce film photographique est sensible à l'intensité du rayonnement auquel il a été exposé, c'est à dire au flux des électrons. Il y a aussi des interfaces microscope ordinateur permettant de stocker et traiter numériquement les données.

Avec le microscope électronique à transmission on peut travailler en deux modes : mode image et mode diffraction. Dans le premier cas, la lentille objectif forme une image de l'objet, image qui est encore agrandie par une lentille intermédiaire et qui est observée sur l'écran. Dans ce mode, l'image est formée de la même façon qu'en microscopie optique. Les images ainsi obtenues peuvent nous donner des informations concernant les dimensions des grains et les défauts qui existent dans l'échantillon. Quand on travaille en haute résolution on peut même visualiser les plans atomiques. Avec un logiciel adéquat il est possible d'obtenir à

partir de ces images, des images des diffractions qui nous donnent des informations concernant la structure cristallographique. Nous avons utilisé le logiciel SCION (http://www.scioncorp.com/frames/fr_scion_products.htm) pour traiter les images de haute résolution.

Dans le deuxième cas, le mode diffraction, on observe l'image en mettant dans le plan focal de l'objectif un diaphragme de contraste. Au cours de l'étude structurale d'un échantillon, la détermination de l'orientation cristallographique est importante. Pour la déterminer, il est nécessaire de prendre plusieurs clichés de diffraction et de les indexer.

Un diagramme de diffraction représente la coupe du réseau réciproque, lié au cristal, par le plan tangent à la sphère d'Ewald parallèle à l'écran fluorescent. La tache centrale en général la plus intense représente l'intersection entre le faisceau transmis et l'écran. Elle est choisie comme origine et toujours indexée par (000). Les autres taches présentes sur l'image de diffraction sont à l'intersection des faisceaux diffractés et de l'écran.

Indexer le diagramme consiste à trouver les coordonnées de ces taches dans le réseau réciproque. En conséquence, pour indexer les clichés obtenus on commence par mesurer les distances entre les taches symétriques par rapport à la tache centrale et les angles entre ces taches. Les valeurs obtenues sont comparées ensuite avec les valeurs calculées pour le cristal étudié.

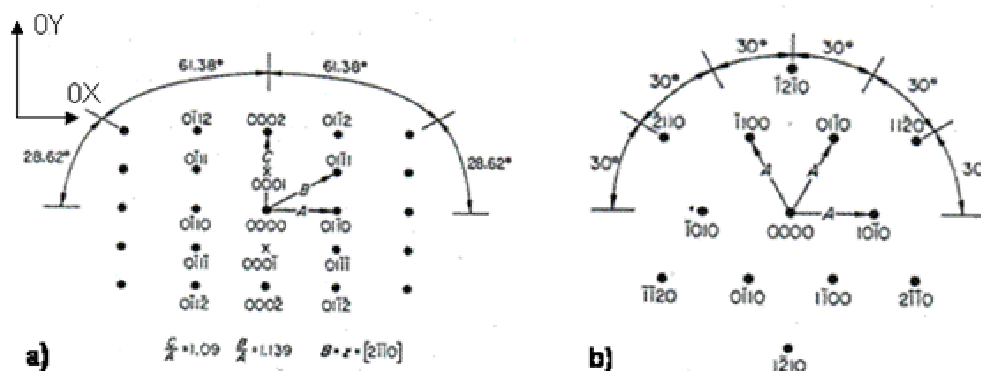


Fig. 2.6 Les images de diffractions calculés théoriquement pour Co de structure hcp pour deux orientations différentes de l'axe c : a) l'axe c est orienté dans la direction $0Y$ et b) l'axe c est perpendiculaire au plan $(0X, 0Y)$

Dans l'annexe sont résumée les valeurs calculées pour un cristal de Co hcp avec différentes orientations de l'axe c.

Pour plus des détails sur la microscopie électronique à transmission se reporter aux références [Rochow 94][Grundy 76].

Une des difficultés de cette méthode d'analyse structurale est le fait que l'échantillon doit être mince (entre 0.5 nm et 30nm) pour être transparent aux électrons, donc il nécessite une préparation préalable qui consiste à diminuer son épaisseur.

Les échantillons que nous avons examinés pendant cette thèse sont des fils de Co et des couches de Co qui dans une première étape ont été déposés directement sur une grille commerciale TEM en Cu, grille recouverte par une couche de carbone. Nous avons également utilisé des grilles de SiN spécialement conçues pour les études TEM.

Une image schématique d'une grille SiN est présentée dans la fig. 2.4. La préparation des grilles a été réalisée au laboratoire CRTBT/CNRS Grenoble par Thierry Fournier et Bruno Fernandez.

Ces grilles sont obtenues par lithographie optique et gravure à partir d'un substrat de Si recouvert des deux cotés par SiN. L'épaisseur de la plaque est d'environ 1000Å. La taille de la fenêtre au milieu de la grille a des dimensions entre 100µm et 600 µm.



Fig. 2.4 Schéma d'une grille SiN utilisée pour visualiser les fils de Co en TEM

Son épaisseur doit être moins que 30nm afin permettre au faisceau d'électrons de le traverser sans problèmes. Sur cette fenêtre le matériau magnétique à analyser (la couche de Co et les fils électrodéposés de Co) est déposé.

Les difficultés de préparation de ces grilles consistent dans l'amincissement de la fenêtre de SiN et de l'épaisseur de la grille qui pour rentrer dans le porte échantillon ne doit pas dépasser 200Å d'épaisseur.

2.4 Caractérisation magnétique des échantillons

Plusieurs techniques qui nous ont permis la caractérisation magnétique des échantillons seront décrites par la suite. Ces techniques peuvent se diviser en deux grandes catégories:

a) techniques qui nous ont permis de déterminer le comportement de l'aimantation en fonction du champ magnétique appliqué. Dans cette catégorie il y a : VSM, SQUID, MOKE.

Pour chaque technique on décrira le mode de fonctionnement, sa sensibilité, ses avantages ou inconvénients.

b) techniques qui nous ont permis de déterminer la configuration magnétique des échantillons. Cette partie contient une description détaillée du microscope à force magnétique (MFM).

2.4.1. Le magnétomètre à échantillon vibrant – VSM

Le principe de fonctionnement d'un magnétomètre à échantillon vibrant s'appuie sur la loi de Faraday, qui dit que la variation au cours du temps du flux d'induction traversant une bobine induit une différence de potentiel aux bornes de la bobine. Dans un VSM la variation de flux est créée par la variation de l'aimantation d'un échantillon magnétique qui vibre près des bobines de détections.

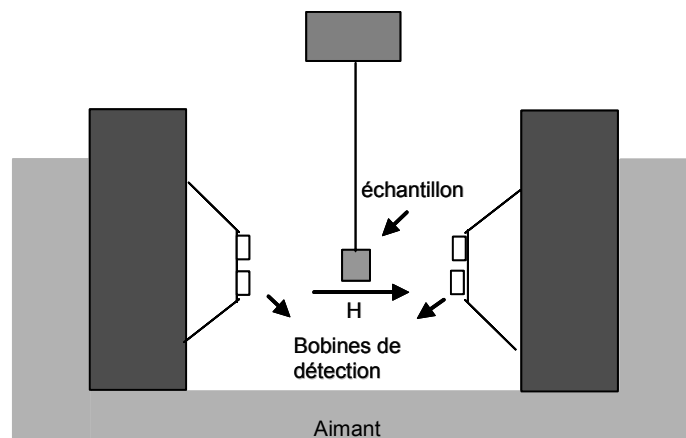


Fig. 2.5 Image schématique d'un magnétomètre à l'échantillon vibrant (VSM)

L'échantillon est connecté par un porte-échantillon à une source de vibration et il est placé au milieu des bobines de détection. Un électroaimant entoure l'échantillon et les bobines de détection. Il est utilisé pour faire varier le champ appliqué sur l'échantillon afin de mesurer la variation de l'aimantation en fonction du champ. Le porte-échantillon dans notre cas permet la rotation de l'échantillon avec une amplitude de 360° par rapport à la direction du champ appliqué.

L'appareil utilisé pendant ma thèse est un VSM produit par ADE Technologies (DMS-digital measurement systems). Le champ maximum applicable pendant les mesures est de 1,7 T et le niveau de bruit est d'environ 2 μemu .

2.4.2. Superconducting Quantum Interferometer Device – SQUID

Le SQUID nous permet également de déterminer le moment magnétique de l'échantillon en fonction du champ externe. Par rapport au VSM il présente quelques avantages comme par exemple une sensibilité plus grande de mesure ou la possibilité de faire des mesures à basse température. Un autre avantage du SQUID est la possibilité de faire des mesures à de champs plus grands, allant jusqu'à 6T.

Les principales parties qui constituent un SQUID sont présentées dans la figure 2.6.

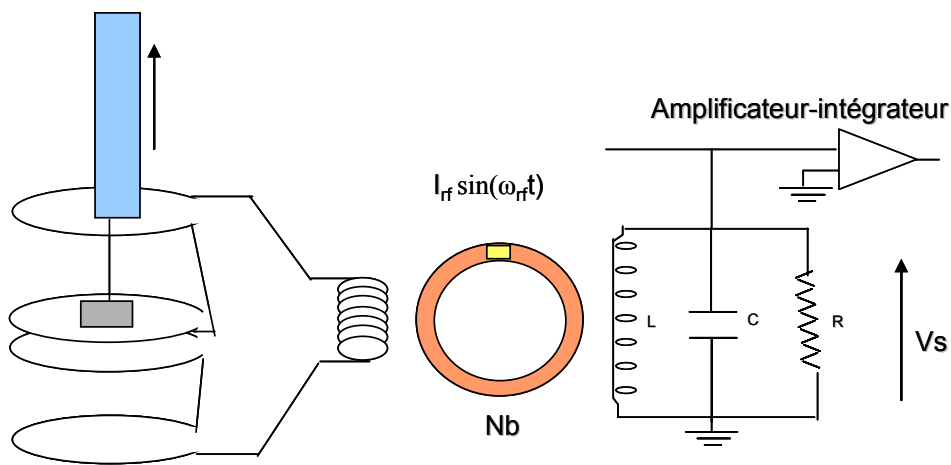


Fig. 2.6 Schéma de magnétomètre à SQUID

L'échantillon à mesurer est installé sur une canne qui exécute un mouvement semblable à une extraction unidirectionnelle le long de l'axe de 4 spires en série montées en opposition et bouclées sur une bobine. Les variations de flux dans la bobine sont proportionnelles à celles obtenues dans les 4 spires et donc à l'aimantation de l'échantillon. La bobine va induire à son tour une variation de flux dans un anneau SQUID supraconducteur de Nb, interrompu par une jonction Josephson (Nb/isolant/Nb). Celui-ci permet de mesurer la variation de la quantité de flux de manière très précise. Sur le principe, en injectant dans l'anneau un courant légèrement supérieur au courant critique de transition métal supraconducteur/ métal normal, la tension de sortie V_s est périodique avec l'intensité de flux qui traverse l'anneau : la période des oscillations correspond au « passage » d'un quantum de flux élémentaire ($\Phi_0 = 2,07 \cdot 10^{-15} \text{Wb}$). L'anneau SQUID utilisé dans cette étude est couplé d'une manière inductive à un circuit oscillant RF qui, à l'aide d'une détection synchrone, donne une tension proportionnelle au nombre intégré d'oscillations observées par V_s durant le

temps d'extraction. La précision sur la variation du flux est de quelques pourcents de Φ_0 et la sensibilité de $5 \cdot 10^{-7}$ emu [Jenks_97].

L'échantillon et les spires de détection sont placés dans un cryostat à He liquide ce qui permet de faire des mesures à basse température jusqu'à 4K.

Les mesures SQUID ont été réalisées au DRFMC/CEA Grenoble sur un appareil MPMS Quantum Design.

Le SQUID nous permet de faire des mesures des cycles d'hystérésis à plusieurs températures et des cycles « zero field cooled –field cooled » (ZFC-FC) qu'on va détailler par la suite.

Cycles ZFC – FC

Le protocole ZFC – FC est un cycle en température. Il permet de décrire le régime magnétique suivi par l'échantillon en fonction de la température. Dans la fig. 2.8 on présente un exemple des mesures d'aimantation effectuées durant le cycle ZFC-FC pour une couche mince de Co.

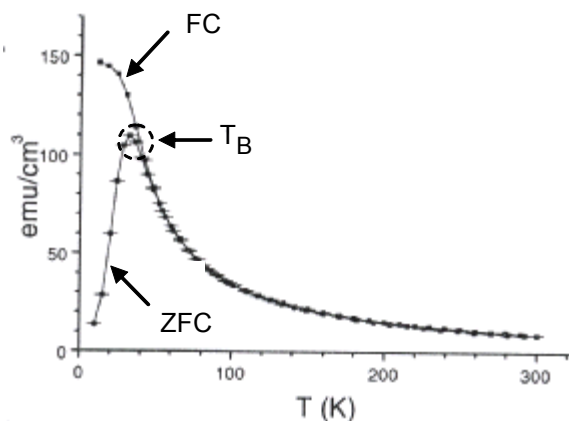


Fig. 2.8 Mesure d'aimantation effectuée durant le cycle ZFC-FC sur une couche de Co/ SiO₂ épaisseur 5.8Å

La partie ZFC est obtenue en mesurant $M(T)$ dans un champ faible 100 Oe après le refroidissement de l'échantillon sous champ nul. Le refroidissement à la plus basse température a pour effet de geler la configuration des moments magnétiques dans un état magnétique désordonné avec une faible aimantation résultante. A ce stade, les particules sont piégées chacune suivant une direction donnée par leur axe de facile aimantation. L'application d'un petit champ de mesure à basse température modifie peu cette configuration désordonnée. Il faut donc atteindre une certaine température de mesure pour libérer les moments magnétiques (agitation thermique suffisante pour vaincre les barrières d'anisotropie) et leur permettre de s'orienter dans la direction du champ externe appliqué. Ceci correspond sur la partie ZFC à la forte remontée de l'aimantation et s'interprète en terme de déblocage progressif des moments au-dessus d'une température dite de « blocage » T_B . Au dessus de

T_B , les moments magnétiques fluctuent librement sous l'effet de l'agitation thermique et l'aimantation suit alors classiquement une loi de Curie- Weiss :

$$M(T) = \frac{\mu^2 H}{3k_B T}, \quad \mu = M_s \cdot V \quad (2.2)$$

T_B définit donc le passage d'un régime bloqué vers un régime superparamagnétique. La valeur de T_B dépend du temps caractéristique de mesure ainsi que de la statistique de population des états magnétiques. Quand le temps de mesure τ_{mes} est plus petit que le temps de fluctuation τ correspondant à la plus haute barrière d'énergie les moments magnétiques paraissent figés. On définit alors la température de blocage T_B par l'égalité $\tau = \tau_{mes}$:

$$\tau_{mes} = \tau_0 \cdot e^{\frac{\Delta E}{k_B T_B}} \quad (2.3)$$

La partie FC est obtenue en mesurant $M(T)$ dans un champ faible, $H=100\text{Oe}$ après le refroidissement de l'échantillon dans un grand champ (dans notre cas $H=5000\text{Oe}$). En effet, lors du refroidissement sous champ, l'aimantation n'est pas piégée dans un état désordonné comme après le refroidissement en champ nul. Elle se gèle progressivement en gardant un composant relativement fort dans la direction du champ. Le refroidissement lent sous champ depuis la phase superparamagnétique permettant d'être plus proche de l'équilibre thermodynamique. Donc les courbes FC présentent une décroissance de M en augmentant la température. Tant que l'on reste au dessus de T_B , les parties ZFC et FC coïncident. Elles ne divergent qu'en dessous de T_B avec la caractéristique FC au dessus de la partie ZFC.

2.4.3. L'effet Kerr magnéto-optique (MOKE)

L'effet Kerr magnéto-optique décrit le changement de l'état de polarisation d'une lumière polarisée linéairement après la réflexion du laser sur la surface d'un échantillon magnétique ou sur un medium dispersif situé dans un champ magnétique. Dans le cas d'un faisceau transmis il s'agit de l'effet Faraday. Les deux effets sont des effets du premier ordre dans le cas où l'aimantation a une composante parallèle au vecteur k du faisceau incident.

En fonction de l'orientation relative de l'aimantation de l'échantillon par rapport au plan d'incidence de la lumière polarisée, on peut distinguer (fig. 2.9) trois configurations différentes de l'effet Kerr :

- a) *l'effet Kerr polaire* – sensible à la composante de l'aimantation perpendiculaire à l'échantillon, située dans le plan d'incidence ;
- b) *l'effet Kerr longitudinal* – sensible à la composante de l'aimantation dans le plan de l'échantillon et parallèle au plan d'incidence ;
- c) *l'effet Kerr transverse* – mesure de la composante de l'aimantation orientée dans le plan de l'échantillon et orthogonale au plan d'incidence du faisceau laser ;

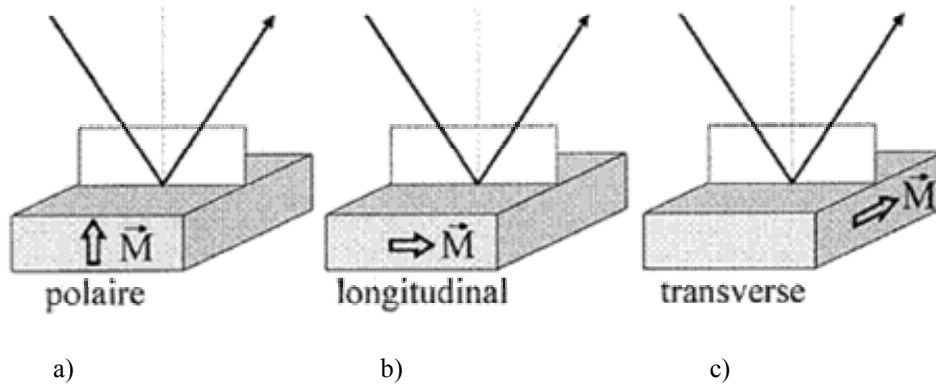


Fig. 2.9 Différentes configurations de l'effet Kerr : a) polaire, b) longitudinal, c) transverse

Afin de mesurer des réseaux de plots de Co nous avons utilisé l'effet Kerr longitudinal. Notre dispositif expérimental contient un laser He-Ne (raie rouge $\lambda = 632.8\text{nm}$) qui envoie un faisceau focalisé d'un diamètre de l'ordre de $50\mu\text{m}$ sur un échantillon placé entre deux bobines d'un électroaimant alimenté par un générateur de courant continu. Le faisceau passe d'abord par un polariseur. Après réflexion de la surface de l'échantillon, le faisceau traverse un analyseur proche de l'extinction avant d'atteindre une photodiode. Le polariseur d'entrée nous permet d'obtenir une polarisation rectiligne de l'onde incidente sur l'échantillon. Nous effectuons l'acquisition des cycles, simultanée de la sortie du détecteur (signal proportionnel à l'aimantation) et du champ magnétique (par une sonde Hall).

Le champ magnétique est créé par un électroaimant et la valeur maximale du champ est de 1kOe .

L'effet Kerr permet de déterminer quantitativement les caractéristiques magnétiques d'un objet magnétique dans la limite d'un nombre réduit de particules identiques [Cowburn_98].

2.4.4 Microscope à force atomique/ magnétique

2.4.3.1 Microscope à force atomique

Le microscope à force atomique a été inventé en 1986 par Benning, Quate, Gerber [Benning_86]. Le principe consiste à mesurer les répulsions atomiques entre les atomes d'une pointe et ceux de l'échantillon. L'année suivante, Martin et Wickramasinghe [Martin_87] l'utilisent pour la détection de forces magnétiques entre un dipôle pointe et un autre dipôle - échantillon.

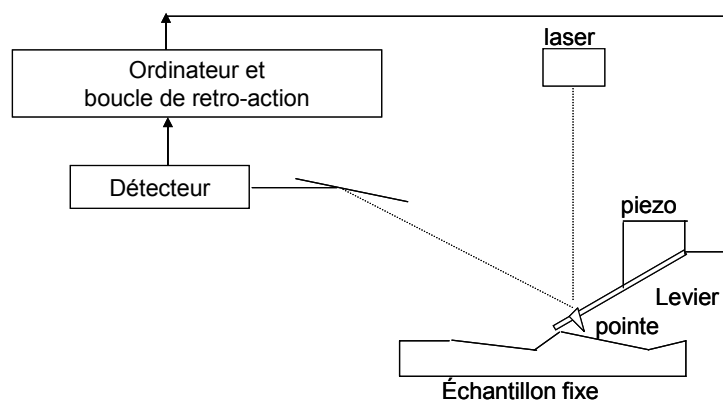


Fig. 2.10 Représentation schématique d'un microscope AFM/MFM

La pointe est montée sur un support élastique, nommé levier ayant une constante de raideur très faible, k . Les interactions entre la sonde et l'échantillon conduisent à la déflexion du levier, déflexion suivie par un faisceau laser, qui envoyé sur le levier, est renvoyé sur les photodiodes. Le courant récupéré au niveau des photodiodes est proportionnel à la déflexion du levier (fig. 2.10).

Pour le microscope à force atomique il y existe deux modes de travail possible : en « contact » quand la pointe est en contact avec la surface de l'échantillon et en mode « tapping » quand la pointe oscille autour d'une position moyenne située au-dessus de la surface mais il n'y a pas de contact avec la surface.

Pendant ce travail nous avons utilisé seulement le mode tapping. Dans ce mode le signal détecté est relié à la fréquence de résonance du levier. Lorsque le levier se rapproche de la surface, les forces attractives de Van der Waals qui s'établissent entre la pointe et la surface provoquent une diminution de la fréquence de résonance. Quand la pointe touche la surface de

l'échantillon les grandes amplitudes d'oscillations fournissent au levier suffisamment d'énergie pour surmonter les forces d'adhésions.

Le microscope à force atomique utilisé pendant ce travail est un microscope Nanoscope IV/ Digital Instruments 3100/ Veeco.

2.4.3.2 Microscope à force magnétique

Le principe de force atomique a été étendu à des forces magnétiques. Afin d'être sensible aux forces magnétiques la pointe utilisée est magnétique. La pointe MFM peut être réalisée soit à partir d'un fil ferromagnétique [Rugar_90], soit à partir d'une pointe AFM recouverte d'un matériau magnétique [Boef_90].

Les pointes obtenues par l'amincissement d'un fil ferromagnétique présentent une bonne résolution latérale, qui est d'autant meilleure que la pointe est fine et son rayon de courbure petit. Leur désavantage est qu'ils ont un moment magnétique relativement grand qui peut influencer d'une manière irréversible la structure magnétique de l'échantillon étudié [Bélliard_97].

Pour nos mesures magnétiques nous avons utilisé des pointes AFM couvertes d'un alliage magnétique Co-Cr (fig. 2.11)¹.

L'utilisation des pointes de ce type, bien qu'elle donne une perte de résolution significative, assure une moindre influence de la sonde sur l'échantillon.

Lorsque la sonde est magnétique, à l'interaction attractive sonde-échantillon de type Van der Waals, il faut ajouter l'interaction entre les dipôles magnétiques de la pointe et ceux de l'échantillon. Les forces Van der Waals sont de courte portée, tandis que les forces magnétiques sont de longue portée.

Si on suppose le levier suffisamment éloigné pour pouvoir négliger les forces Van der Waals en présence d'un champ de fuite B de l'échantillon, la force magnétique par unité de volume, qui s'exerce sur la pointe vérifie la relation :

$$\vec{F} = \int_{\text{volume pointe}} \nabla(\vec{m} * \vec{B}) dV \quad (2.4)$$

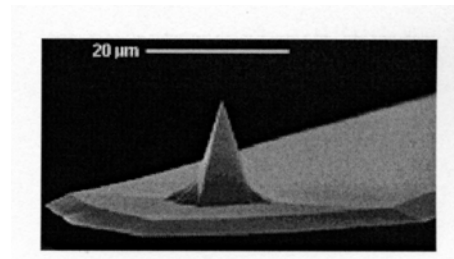


Fig. 2.11 Pointe utilisée en MFM, un matériau magnétique a été déposé sur une pointe AFM de Si

¹ Point magnétique standard : Nanosensor type MFM

Où \vec{m} est l'aimantation (par unité de volume) de la pointe, considérée comme un dipôle. On suppose le levier parallèle à la surface de l'échantillon : seule la composante verticale de la force affecte la déflexion du levier.

$$F_z = m_x \cdot \frac{\partial B_x}{\partial z} + m_y \cdot \frac{\partial B_y}{\partial z} + m_z \cdot \frac{\partial B_z}{\partial z} \quad (2.5)$$

On suppose les aimantations de la pointe et de l'échantillon fixes, le gradient de force s'exprime comme :

$$\frac{dF_z^{mag}}{dz} = \mu_0 \cdot \int_{pointe} \left(m_x \cdot \frac{\partial^2 B_x}{\partial z^2} + m_y \cdot \frac{\partial^2 B_y}{\partial z^2} + m_z \cdot \frac{\partial^2 B_z}{\partial z^2} \right) dV \quad (2.6)$$

Les interactions magnétiques, attractives ou répulsives, entre la pointe et les lignes de champ magnétique émergent des variations de la fréquence d'oscillation du levier donc de son amplitude (A).

Si on considère que la pointe, aimantée dans la direction z, est un dipôle \vec{m} et que le système ne change pas de structure magnétique, on a :

$$\Delta A \sim \frac{\partial F_z^{mag}}{\partial z} \sim \frac{\partial^2 H_z^{mag}}{\partial z^2} \quad (2.7)$$

où ΔA est la variation d'amplitude d'oscillation du levier.

Séparation de l'information magnétique de l'information topographique

Une méthode particulièrement élégante qui permet de séparer les images topographiques de celles magnétiques a été mise au point par Digital Instruments. La séparation est réalisée par le double balayage de chaque ligne d'une image correspondant à une zone de l'échantillon effectuée par la pointe magnétique. Lors du premier passage, le levier est très proche de la surface (le levier oscille autour d'une altitude moyenne inférieure à 20nm), on relève la topographie de l'échantillon. Lors du second passage, l'élément piézo-électrique répète exactement le mouvement précédent mais avec un décalage de quelques dizaines à une centaine de nanomètres, imposé par l'opérateur. L'information topographique

est ainsi éliminée sauf pour les régions de l'échantillon très accidentées ; les configurations magnétiques de l'échantillon sont récupérées en enregistrant alors le décalage en fréquence de résonance du levier.

Contraste MFM des nanostructures magnétiques

Les mesures MFM réalisées pendant cette thèse ont été effectuées avec des pointes aimantées perpendiculairement à la surface de l'échantillon, donc verticalement. De ce fait les images recueillies contiennent exclusivement des informations sur la composante verticale du champ de fuite émanant de l'échantillon. Il faut remarquer que deux configurations magnétiques différentes qui fournissent un champ de fuite identique ne sont pas distinguables.

Dans le cas des nanostructures analysées (nanofils de Co, plots NiFe) qui ont une taille latérale réduite, ce sont les charges de surface le long des bords de ces objets et les charges de volume qui donnent le contraste magnétique.

Afin de suivre la variation de la configuration de l'aimantation avec un champ nous avons réalisé des mesures sous un champ magnétique extérieur. Ce champ magnétique est créé par un dispositif constitué de deux aimants qui sont reliés entre eux. Les aimants peuvent être éloignés ou rapprochés. L'échantillon est placé au centre du dispositif, entre les aimants et le champ est appliqué dans le plan de l'échantillon. Ce champ a été calibré préalablement avec une sonde Hall. La valeur maximale du champ qui peut être appliqué est de 1000 Oe.

Le microscope à force magnétique est un outil puissant qui présente une bonne sensibilité. Un autre avantage est le fait que l'échantillon ne nécessite pas de préparation avant la mesure et les observations sont faites à l'ambiante.

Parmi ses inconvénients on peut énumérer la difficulté d'interprétation des contrastes magnétiques et l'influence que la pointe peut avoir sur l'échantillon mesuré [Aharoni_93] [Mamin_89][Muller_94][Rave_94][Scheinfel_90]. Cette interaction peut être réversible mais il y a aussi des situations où elle est irréversible, comme par exemple le déplacement des parois à l'intérieur de l'échantillon.

Références bibliographiques du chapitre 2 :

- [Aharoni_93] A. Aharoni, J. P. Jakobovich, J. Appl. Phys. **73**, 6498 (1993)
- [Arai_89] I. Arai, J. Magn. Soc. Jpn **13**, 789 (1989)
- [Bélliard_97] L. Bélliard, « La microscopie à force magnétique : du semi massif aux nanostructures », thèse Université Paris XI Orsay, (1997)
- [Binning_82] G. Binning, H. Rohrer, Ch. Gerber, E. Weibel, Appl. Phys. Lett. **40**, 178, (1982) ; G. Binning, H. Rohrer, Ch. Gerber, E. Weibel, Physica 109/110b, 2075(1982) ; G. Binning, H. Rohrer, Ch. Gerber, E. Weibel, Phys. Rev. Lett **49**, 57, (1982)
- [Boef_90] J. den Boef, Appl. Phys. Lett. **56**, 2045 (1990)
- [Chen_94] Y. Chen, K. R. Kupp, J. Vac. Sci. Techn., **12**, 3959 (1994)
- [Chen_00] Y. Chen, A. Lebib, S.P. Li, D. Peyrade, M. Natali, A. Pepin, E. Cambril, Eur. Phys. J., **12**, 223 (2000)
- [Chou_95] S. Y. Chou, P. R. Krauss, P. J. Renstrom, Appl. Phys. Lett, **77**,3114 (1995)
- [Chou_98] S. Y. Chou, P. R. Krauss, W. Zhang, L. Guo, L. Zang, J. Vac. Sci, Technol. **15**, 2897 (1998)
- [Chopra_97] K.L.Chopra, “Thin film phenomenam” McGraw- Hill Book Company, Oxford Science Publications (1997)
- [Cowache_95] C. Cowache, thèse Université Joseph Fourier, Grenoble (1995)
- [Cowburn_98] R. Cowburn, D.K. Koltsov, A. O. Adeyeye and M.E. Welland, Appl. Phys. Lett. **73**, 3947 (1998)
- [Gadetsky_94] S. Gadetsky, T. Susuki, J.K. Erwin, M. Mansuripur, IEEE Trans. Magn., **30**, 4404 (1994)
- [Gadetsky_96] S. Gadetsky, J.K.Erwin, M. Mansuripur, T. Susuki, J. Appl. Phys., **79**, 5687, (1996)
- [Giacomoni_98] L. Giacomoni, thèse Université Joseph Fourier, Grenoble (1998)
- [Grudy_76] P.J. Grundy and G.A. Jones, « Electron microscopy in the study of

- Materials » Edwards Arnold, 1976
- [Jenks_97] W.G. Jenks, J. Phys. D: Appl. Phys. **30**, 293 (1997)
- [Landis_01] S. Landis, « Réseaux des plots magnétiques sub- microniques réalisés à partir de substrats pré- gravés », thèse Université J. Fourier, Grenoble, 2001
- [Mamin_89] H. J. Mamin, D. Rugar, J.E. Stern, B.D.Terris, E. S. Lambert, Appl. Phys. Lett. **53**, 1563 (1988)
- [Martin_87] Y. Martin, H.K. Wickramasinghe, Appl. Phys. Lett. **50**, 1455 (1987)
- [Matsui_00] S. Matsui, « Handbook of Nanostructured Materials and Technology », Vol 3, Ch 11, 555-564 (2000)
- [Mevel_97] B. Mevel, thèse Université Joseph Fourier, Grenoble (1997)
- [Micha_02] J. S. Micha, « Etude structurale et morphologique de multicouches discontinues métal- oxyde », thèse Université Joseph Fourier, 2002
- [Muller_94] S. Muller- Pfeiffer, M. Schneider, W. Zinn, Phys Rev. Lett. **19**, 15745 (1994)
- [Rave_94] W. Rave, L. Belliard, M. Labrune, A. Thiaville, J. Miltat, IEEE Trans. Magn. **30**, 4473 (1994)
- [Rochow_94] T. Rochow, P.Tucker « Introduction to Microscopy by Mean on light, electrons, X Ray, ou Acoustic », Plenum Press, New York, 1991
- [Rugar_90] D. Rugar and P. Hansma, Physics Today **43**, 23 (1990)
- [Scheinfein_90] M.R. Scheinfein, J. Unguris, D. T. Pierce, R. J. Celotta, J. Appl. Phys. **67**, 5932 (1990)

Chapitre 3:

Plots circulaires, l'influence des interactions dipolaires

3.1 Introduction.....	61
3.2 Le cas d'un plot isolé.....	62
3.3 Systèmes des plots en interaction dipolaire.....	66
3.4 La description du système étudié.....	67
3.5 Corrélation des chiralités des vortex dans des réseaux de plots.....	68
3.5.1 Réseau carré des plots circulaires espacés.....	69
3.5.2 Réseau de chaînes de deux plots.....	70
3.5.3 Réseau des chaînes des plots arrangés en zig- zag.....	73
3.5.4 Réseau des plots arrangés dans une structure hexagonale.....	76
3.6 L'influence des interactions dipolaires sur la dépendance angulaire du champ de nucléation et d'annihilation pour différents types de structures.....	78
3.7 Conclusion.....	83
Références bibliographiques du chapitre.....	84

3.1 Introduction

Parmi les systèmes nanométriques qui ont suscités beaucoup d'intérêt dans les dernières années font partie les systèmes des plots plats avec une taille latérale plus grande que l'épaisseur. Leur possible application dans le domaine des mémoires magnétiques a déterminé un fort développement des méthodes de préparation de ce type de système. Ces méthodes de préparation ont permis la réalisation des plots magnétiques de formes variées telle que des carrés [Cowburn_98], des disques [Cowburn_99], [Rybczynski_03],[Wassermann_98], [Shinjo_00], des triangles [Cowburn_00] ou des anneaux [Klaui_03] et préparées à partir des différents matériaux magnétiques comme le permalloy [Hillebrands_97][Miramond_97], le fer [Wassermann_98][Hanson_98] et le cobalt [Demand_99][Lebib_01]. La taille des plots varie également dans une gamme assez large, elle pouvant atteindre des valeurs submicroniques [Cowburn_99].

Cette large variété des plots a offert la possibilité d'étudier des phénomènes micromagnétiques très intéressants, les nanoplots constituant des systèmes modèles pour l'étude des états fondamentaux [Shinjo_00] [Demand_00] ou des mécanismes de retournement de l'aimantation [Gusliencko_02].

Un aspect très important concerne l'influence des interactions dipolaires sur le comportement des réseaux de plots avec des séparations entre les plots inférieures à la taille de plots. Dans le cas des plots qui ont comme état fondamental l'état vortex, a été mis en évidence que les interactions dipolaires sont à l'origine des phénomènes de renversement collectives de l'aimantation [Novosad_02]. Elles entraînent également la formation, par un processus d'avalanche, des chaînes des vortex de sens de circulation de l'aimantation identique [Natali_02].

Le but de notre étude est de montrer la possibilité de contrôler le sens de circulation de l'aimantation à l'intérieur d'un plot circulaire quand les plots sont placés dans une géométrie adéquate. Ce contrôle est possible à l'aide des interactions dipolaires. Pour cette étude nous avons choisi des systèmes des plots circulaires de diamètre de 900nm et d'épaisseur de 30nm. Ils ont été préparés par la technique de nano- impression (voir section 2.2.2.1). Le comportement magnétique des plots sera étudié par des observations de microscopie à force magnétique corrélées avec des simulations micromagnétiques réalisées avec le logiciel public « OOMMF » et des mesures de magnétométrie à effet Kerr. Les études ont été réalisées en collaboration avec Marco Natali du Laboratoire CNR, Padova, Italie.

3.2 Le cas d'un plot isolé

Avant de présenter les études sur l'interaction dipolaire entre les plots, nous allons passer en revue certaines propriétés magnétiques d'un plot isolé et la dépendance de ces propriétés magnétiques de différents facteurs tel que : les dimensions des plots, le champ magnétique appliqué.

a) les états fondamentaux d'un plot isolé

En champ nul, en fonction du diamètre et d'épaisseur, un plot circulaire peut se trouver dans un des deux états magnétiques stables : l'état monodomaines ou l'état vortex.

Dans l'état *monodomaine* (SD) l'aimantation reste dans le plan du disque et elle est principalement alignée dans une direction comme on peut voir dans la fig. 3.1a

Les simulations micromagnétiques [Buda_01_1] (fig.3.1) montrent que l'appellation monodomaine n'est pas très juste. En effet l'interaction magnétostatique oblige l'aimantation à s'aligner parallèle au bord du plot, donc il s'agit plus tôt d'un état *quasi monodomaine*. Cependant, pour simplicité, on va faire référence à cet état comme un état monodomaine.

Pour l'état *vortex*, l'aimantation tourne dans le plan du plot en suivant ses bords, assurant ainsi la fermeture du flux. Par conséquence, une singularité va apparaître au centre du plot où l'aimantation doit sortir hors du plan (fig.3.1b) pour des raisons topologiques. Cette fermeture de flux assure une réduction considérable de l'énergie magnétostatique du système, tandis que la partie centrale où l'aimantation sort du plan, engendre une importante énergie d'échange. Plus de détails sur les propriétés d'un vortex sont mentionnés dans le chapitre 1.

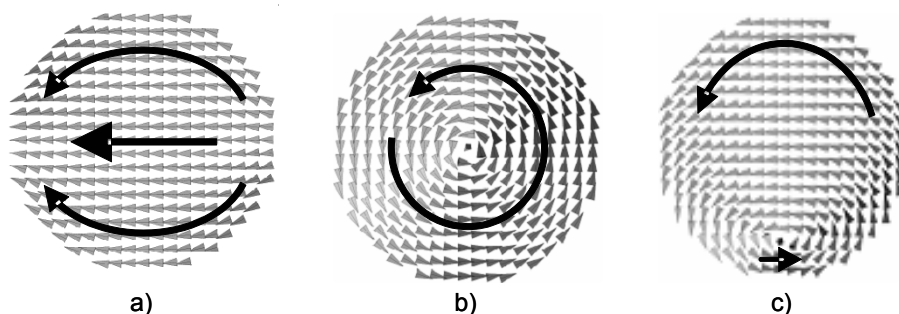


Fig. 3.1 Configuration micromagnétique pour des plots de Co de diamètre 200nm et épaisseur 15 nm dans un état : a) monodomaine (en champ nul), b) vortex (en champ nul) et c) vortex déplacé (sous champ) [Buda_01_1]

Sous l'action d'un champ magnétique, le cœur du vortex sera déplacé du centre du plot vers ses bords. Dans ce cas on obtient un vortex déplacé pour lequel la configuration micromagnétique est représentée sur la fig. 3.1c.

Pour un état vortex, on distingue quatre états dégénérés en fonction du sens de circulation de l'aimantation à l'intérieur du plot et ainsi un nouveau concept est introduit : la chiralité du vortex. Quand l'aimantation à l'intérieur du vortex tourne dans le sens des aiguilles d'une montre, le vortex a une chiralité *clockwise* et quand elle tourne en sens opposé la chiralité est *anticlockwise*. Pour chaque sens de rotation de l'aimantation au centre du plot on a deux orientations possibles de l'aimantation : qui sort ou entre dans le plan du plot.

Dans le cas d'un système magnétique qui peut être dans différents états stables, il se pose la question de savoir lequel de ces états a l'énergie la plus basse, ça veut dire lequel est l'état fondamental. Des études antérieures ont montré que le diamètre et l'épaisseur des plots sont des facteurs qui influencent leur état fondamental [Buda_02].

Afin de comprendre ce comportement, des considérations énergétiques doivent être prises en compte. Des simulations micromagnétiques réalisées par L. Buda [Buda_02] ont permis de calculer la densité d'énergie d'échange et la densité d'énergie magnétostatique pour des plots circulaires de Co d'épaisseur 10nm en fonction du diamètre.

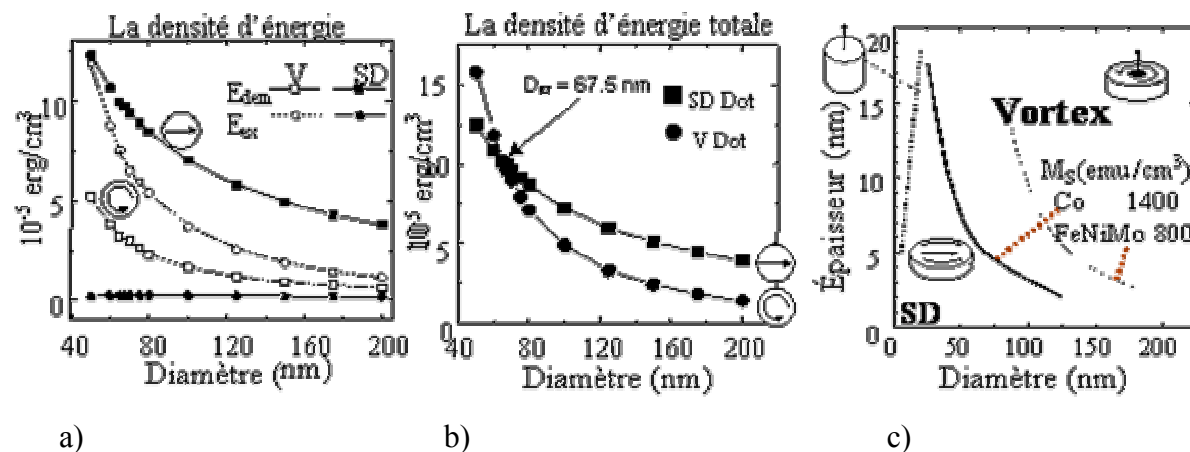


Fig. 3.2 Simulations micromagnétiques : a) de la densité d'énergie d'échange et démagnétisante pour un état vortex et un état monodomaine, b) de la densité d'énergie totale, c) du diagramme de phase pour vortex et état monodomaine [Buda_02]

Comme on peut voir sur la fig.3.2a pour un état monodomaine l'énergie magnétostatique décroît avec l'augmentation de diamètre. Ceci s'explique si on tient compte du fait que les charges de surface deviennent de plus en plus éloignées, donc la densité d'énergie magnétostatique qui est l'énergie divisée par le volume du plot diminue elle aussi. Par contre, l'énergie d'échange est négligeable.

Pour l'état vortex, l'énergie d'échange localisée dans le vortex est constante donc la densité d'énergie d'échange décroît avec l'augmentation du diamètre de plot. L'énergie démagnétisante pour un plot dans un état vortex est petite (il reste peu des charges de surface) mais la densité d'énergie démagnétisante diminue avec l'augmentation de diamètre.

A partir de ces informations on peut obtenir la densité d'énergie totale qui est la somme de la densité d'énergie démagnétisante et de la densité d'énergie d'échange (on n'applique pas de champ externe donc l'énergie Zeeman est nulle et on considère qu'il n'y a pas d'anisotropie magnéto- cristalline). Cette densité d'énergie est représentée sur la fig.3.2b en considérant l'épaisseur du plot constante. Comme on peut voir pour un diamètre inférieur à un diamètre critique D_c ($d < D_c$) la densité d'énergie totale est plus grande pour l'état vortex que pour l'état monodomaine donc le plot préfère l'état monodomaine. Quand $d > D_c$, l'état fondamental est l'état vortex parce que la densité d'énergie totale du vortex est inférieure à celle d'un état monodomaine.

Ce diamètre critique D_c dépend de l'épaisseur du plot comme indiqué sur la fig.3.2c. En augmentant l'épaisseur, D_c décroît parce que l'énergie démagnétisante d'un état monodomaine augmente avec l'épaisseur du plot ce qui fait qu'en diminuant le diamètre, le vortex reste l'état fondamental jusqu'à des diamètres plus petits.

b) le renversement de l'aimantation dans un plot en passant par l'état vortex

Nous allons nous intéresser maintenant au renversement de l'aimantation dans un plot qui a comme état fondamental l'état vortex.

Sous l'influence du champ externe appliqué dans le plan du plot suffisamment important le plot est dans un état monodomaine.

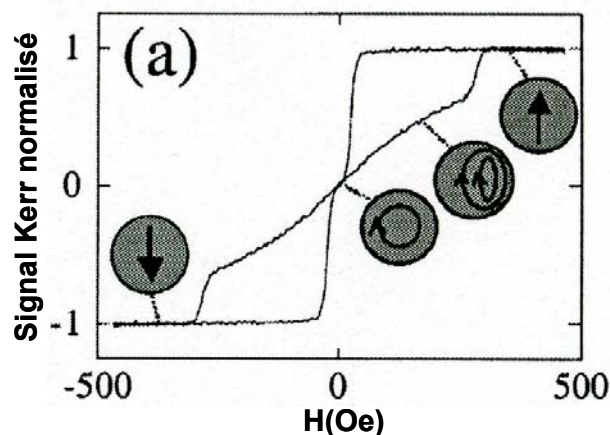


Fig.3.3 Cycles d'aimantation d'un plot de NiFe de diamètre 500nm et épaisseur 30nm [Prejbeanu_02]

En diminuant le champ externe en dessous d'une valeur critique H_n , nommé champ de nucléation, le vortex entre par l'une des extrémités de plot qui sont perpendiculaires à la direction du champ appliqué. Quand le champ est diminué davantage, le vortex se déplacera vers le centre du plot.

En champ nul le vortex est équilibré au centre du plot. Si on commence à augmenter le champ dans la direction opposée, le vortex se déplacera vers l'autre extrémité du plot et il sera expulsé au deuxième champ critique H_a , nommé champ d'annihilation. (fig.3.3)

Les valeurs de ces champs sont liées au champ démagnétisant du plot et dépendantes donc de ses dimensions. La diminution de l'épaisseur du plot induit un déplacement des champs de nucléation et d'annihilation vers des valeurs absolues plus petites. En effet, en diminuant l'épaisseur du plot le nombre des charges magnétiques situées aux bords du plot sera réduit ce qui conduit à une diminution du champ démagnétisant. Le champ démagnétisant étant plus faible, l'état monodomaine sera stabilisé et ainsi la nucléation du vortex va avoir lieu à un champ plus petit. Les mêmes considérations peuvent être appliquées quand le diamètre du plot augmente. Dans ce cas, les charges des surface deviennent plus éloignées, donc le champ démagnétisant sera plus petit et les champs de nucléation et d'annihilation diminueront [Lebib_01] [Schneider_01].

Quand le champ externe appliqué dans le plan du plot est égal au champ de nucleation, deux vortex peuvent nucléer aux bords du plot situés perpendiculairement à la direction du champ appliqué à cause de la symétrie du plot. Pour des petits diamètres, l'échange ne permet pas la nucléation de deux vortex à l'intérieur du plot. Comme la probabilité que le vortex entre par un bord ou par l'autre bord est la même, les défauts ou les inhomogénéités locaux vont décider quel vortex va se former.

c) le contraste magnétique associé à un vortex et à un état monodomaine

Le contraste magnétique obtenu par microscopie MFM et associé à un plot qui est dans un état monodomaine et vortex est présenté sur la fig.3.4.

L'état monodomaine (fig.3.4a) est caractérisé par un fort contraste dipolaire noir-blanc donné par l'accumulation des charges magnétiques de surface laterale.

Dans la cas d'un vortex, la rotation de l'aimantation suivant les bords des plots va diminuer les charges de surface et aucun contraste magnétique n'est observé avec l'aide du MFM. Uniquement le cœur du plot où l'aimantation sort du plan donnera un contraste

magnétique qui est soit blanc soit noir en fonction de l'orientation de l'aimantation « up » ou « down ». (fig.3.4b)

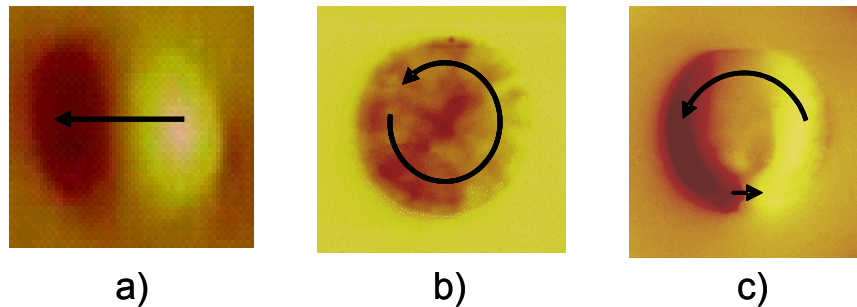


Fig.3.4 Contrastes magnétiques obtenus en MFM pour un plot de Co de 800 nm diamètre et 30 nm d'épaisseur qui est dans un état: a) monodomaine, b) vortex et c) vortex déplacé

Les observations d'un état vortex ont été réalisées à la rémanence après une saturation dans le plan du plot. Quand un champ magnétique est appliqué sur un plot en état monodomaine, le vortex va se déplacer vers le bord du plot et un contraste magnétique dipolaire apparaît comme on voit dans la fig.3.4c. Ainsi, il est possible d'obtenir le sens de circulation de l'aimantation à l'intérieur d'un vortex. Ce concept a été appliqué dans mes études qui seront présentés dans la section 3.5.

3.3 Systèmes des plots en interaction dipolaire

Jusqu'à présent le cas d'un plot isolé a été discuté. Dans la suite on va s'intéresser aux réseaux de plots avec une séparation entre les plots de plus en plus petite, séparation qui devient inférieure au diamètre du plot.

A cause de ces petits espacements entre les plots, les interactions dipolaires entre les plots vont jouer un rôle plus important. Les conséquences de ces interactions qui seront discutées ici sont : la modification du champ de nucléation et d'annihilation, la corrélation des chiralités des vortex.

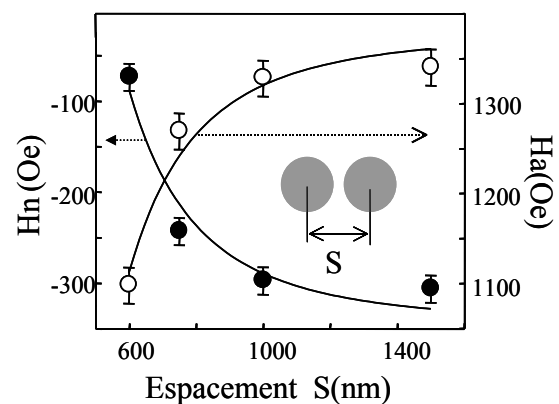


Fig.3.5 La dépendance du champ de nucléation et du champ d'annihilation de la séparation S entre les plots [Prejbeanu_01]

L'influence de l'espacement entre les plots sur les valeurs du champ de nucléation et d'annihilation est présentée sur la figure 3.5 pour des réseaux de plots de Co de 500 nm de diamètre et 30 nm d'épaisseur [Prejbeanu_01].

On observe que les deux champs, de nucléation et d'annihilation augmentent en valeur absolue avec l'espacement entre les plots (fig.3.5).

Ce comportement est explicable si on prend en considération le rôle joué par les interactions dipolaires, rôle qui est de plus en plus important en diminuant l'espacement entre les plots.

Le champ total qui agit sur un plot du réseau est : $\vec{H}_{tot} = \vec{H}_{app} + \vec{H}_{dip}$, où H_{app} est le champ externe appliqué H_{dip} est le champ d'interaction dipolaire entre les plots voisins (on ne considère pas l'effet des voisins qui ne font pas parti de la ligne parallèle à la direction de champ parce que les interactions dipolaires avec ces voisins sont moins fortes – les interactions dipolaires sont plus importantes le long de la direction du champ).

L'orientation du champ d'interaction dipolaire est parallèle à l'orientation de l'aimantation dans les plots et renforce ainsi l'alignement de l'aimantation avec le champ. Lorsque le champ magnétique externe est réduit de la saturation, le champ d'interaction dipolaire se rajoute au champ externe. En conséquence l'état monodomaine du plot est préservé jusqu'au moment où la somme entre le champ externe et le champ d'interaction dipolaire égalise la valeur du champ de nucléation du plot. Ainsi, des interactions dipolaires plus intenses font que la nucléation des vortex est déplacée vers des valeurs plus petites du champ externe.

Afin d'expliquer le comportement du champ d'annihilation le même raisonnement doit être fait. On part d'un état vortex et on applique un champ externe de plus en plus grand. Le vortex va se déplacer sous l'action du champ externe et va induire l'apparition d'un moment magnétique net qui est responsable des interactions dipolaires dans le système. Des interactions dipolaires fortes conduisent à des champs d'annihilations plus petits.

3.4 La description du système étudié

Dans notre étude, nous allons nous intéresser aux effets des interactions dipolaires sur des réseaux de plots circulaires arrangés dans différentes configurations.

Les plots analysés sont des plots de NiFe avec un diamètre de 900 nm et une épaisseur de 30 nm. Leur préparation a été décrite dans le chapitre 2. Conformément au diagramme de phase présenté sur la fig.3.2c, l'état fondamental de ces plots est l'état vortex. La taille des plots a été ainsi choisie afin de permettre la nucléation d'un seul vortex et de bien visualiser la formation d'un vortex déplacé.

Les plots ont été arrangés dans les configurations suivantes : réseau carré des plots espacés, réseau des chaînes de deux plots, des chaînes des plots en zig-zag et réseau des plots arrangés dans un hexagone.

Dans le réseau carré la séparation bord à bord entre les plots est de 700 nm suffisant pour négliger les interactions dipolaires. Pour toutes les autres configurations une séparation entre les plots plus petite a été choisie ($S=100$ nm) afin d'augmenter le rôle joué par les interactions dipolaires.

Les images MEB montrent une bonne qualité des réseaux (fig.3.6).

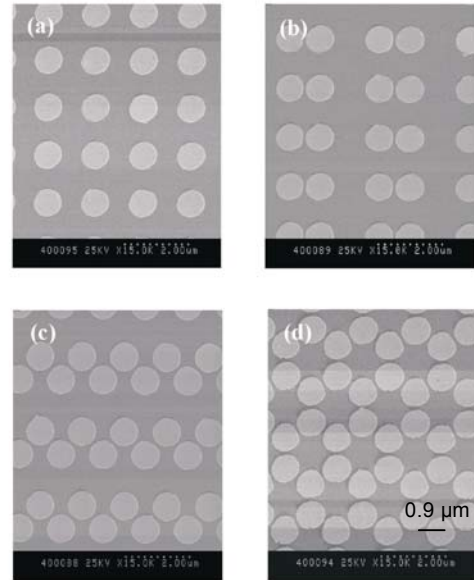


Fig.3.6 Images topographiques obtenues par MEB pour : a) réseau carré, b) chaîne de deux plots, c) chaînes des plots en zig- zag, d) réseau hexagonal

Le choix de nos configurations est basé sur les observations antérieures faites par M. Natali sur des réseaux carrés de plots circulaires de cobalt avec un diamètre de $1\mu\text{m}$ et une séparation de $1,1\mu\text{m}$ [Natali_02].

Si dans ces réseaux serrés, le champ magnétique externe est appliqué à 45° par rapport aux axes du réseau de plots, on observe que les sens de circulation de l'aimantation dans les plots qui forment des chaînes zig- zag sont opposés (fig.3.7).

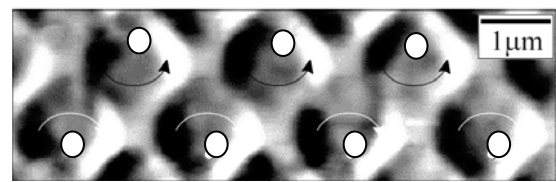


Fig.3.7 Corrélation des chiralités des vortex dans un réseau serré des plots [Natali_02]

Dans ce cas le numéro maximal des plots pour lequel cette corrélation a été trouvée est assez faible (environ 7 plots) à cause des frustrations causées par les voisines.

3.5 Corrélation des chiralités des vortex dans des réseaux de plots

La sélection d'une certaine chiralité pour un plot peut s'effectuer par plusieurs méthodes. Une méthode consiste dans l'introduction d'une asymétrie dans la forme du plot comme a été montré par Schneider et al. [Schneider_01]. Lorsqu'un plot a un bord plat, le vortex va nucléer toujours au bord plat (fig. 3.8).

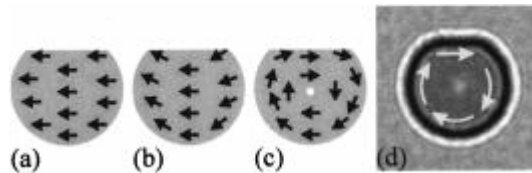


Fig. 3.8 a)→ c) Model de l'évolution d'un vortex en diminuant le champ appliqué à partir de la saturation ; d) image d'un vortex prise en microscopie Lorentz [Schneider_01]

L'explication consiste dans le fait qu'en diminuant le champ externe appliqué à partir de la saturation, l'aimantation va essayer de suivre le bord du plot. Parce que le bord rond est plus long que le bord plat une direction préférentielle de rotation de l'aimantation sera établie en déterminant l'apparition du vortex au bord plat. Ainsi la chiralité du vortex est prédéterminée.

Une deuxième méthode qui permet le contrôle de la chiralité d'un vortex sera présentée par la suite et elle est basée sur les interactions dipolaires qui agissent entre les plots. La corrélation entre les chiralités des vortex sera mise en évidence par des mesures MFM.

Pendant toutes les études MFM la procédure pour obtenir le vortex a été la même : l'échantillon a été tout d'abord saturé dans un champ externe important d'environ 1 kOe et après le champ est diminué jusqu'à zéro et augmenté dans le sens opposé jusqu'à une valeur de 170 Oe (déterminée expérimentalement) nécessaire pour nucléer le vortex. Après la nucléation, le vortex est suffisamment stable, donc l'action de la pointe MFM ne peut plus modifier le sens de circulation de l'aimantation à l'intérieur du plot parce que cela impliquera l'annihilation du vortex et la nucléation dans le sens opposé.

3.5.1 Réseau carré des plots circulaire espacés

En utilisant la méthode des vortex déplacés pour déduire la chiralité d'un vortex, nous avons analysé plusieurs régions d'un réseau de plots espacés, la distance bord à bord entre les deux plots voisins étant de 700 nm. Une de ces images est présentée sur la figure 3.9. On observe la présence dans les réseaux, des vortex déplacés avec les deux chiralités possibles : *clockwise* et *anticlockwise*. Pour mieux illustrer la chiralité des vortex nous avons représenté sur la fig.3.9b par des plots gris les vortex avec une chiralité *anticlockwise* et par des plots blancs les vortex avec une chiralité *clockwise*.

Comme on peut voir sur les images il y a une distribution aléatoire des chiralités des vortex. Une étude statistique a été réalisée dans différentes régions du réseau et on trouve que sur 148 plots 73 ont une chiralité *clockwise* et 75 *anticlockwise*.

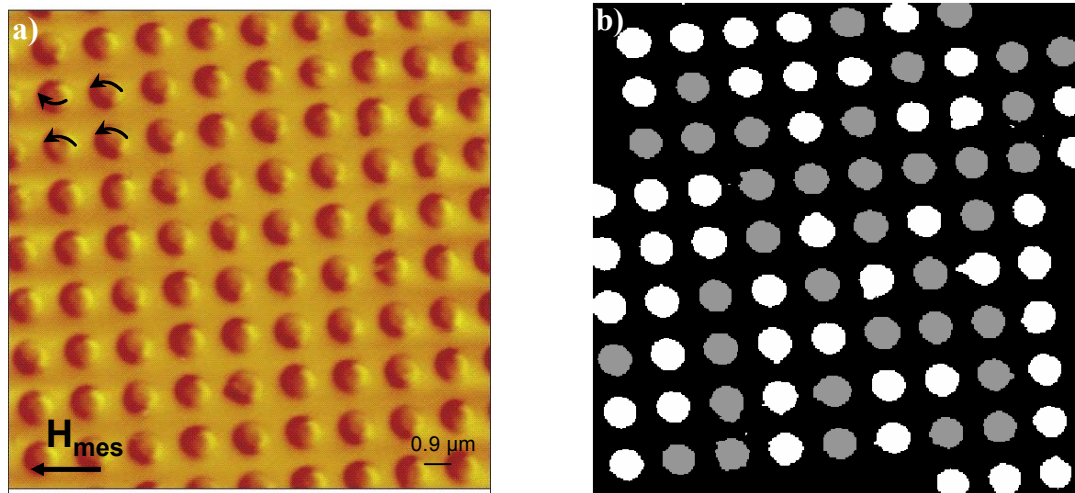


Fig.3.9 a) Image MFM d'un réseau de plots espacés sous un champ de 170 Oe; b) la représentation des chiralités des vortex d' image a : gris –anticlockwise et blanc -clockwise

Il s'agit donc ici d'un résultat prévisible et on peut également extraire des informations sur la qualité des nos plots. Comme les plots n'ont aucune préférence pour une certaine chiralité des vortex qu'ils forment, on peut dire que les plots ne présentent aucun défaut systématique qui pourrait favoriser une certaine chiralité (voir fig.3.8).

3.5.2 Réseaux des chaînes de deux plots

Ce réseau est constitué des chaînes de deux plots de 900 nm de diamètre, avec une séparation entre les bords des plots de 100 nm.

La méthode de réalisation des études MFM est la même que celle présentée au début du paragraphe 4, sauf que le champ externe est appliqué à deux angles différentes par rapport à l'axe de la chaîne : 0° et 45° .

On commence notre étude avec le cas quand le champ magnétique externe est appliqué parallèle à l'axe de la chaîne de deux plots (fig.3.10).

En réalisant une statistique sur la chiralité des plots qui composent les chaînes on a observé que dans 50% des chaînes les plots ont des chiralités opposés et dans les autres 50% des chaînes les plots ont la même chiralité. Ceci correspond à une distribution aléatoire de la chiralité des plots à l'intérieur de la chaîne.

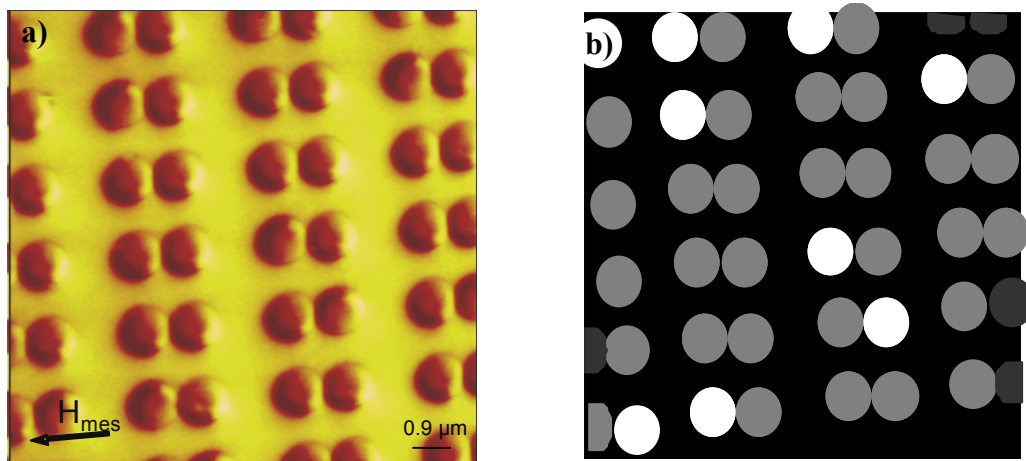


Fig.3.10 Image MFM sous champ d'un réseau avec des chaînes de deux plots le champ externe parallèle à l'axe de la chaîne

Quand le champ est appliqué à 45° par rapport à l'axe de la chaîne une corrélation existe entre les deux plots voisins qui forment la chaîne. Cette corrélation consiste dans le fait que les deux plots ont des chiralités opposés, comme indiqué sur la fig.3.11a et schématisé sur la fig.3.11b. Les plots gris dans l'image 3.11b représentent un vortex de chiralité anticlockwise et les plots blancs les vortex de chiralité clockwise.

La statistique réalisée sur ce type de système, en mesurant plusieurs régions du réseau nous montre que 75% des chaînes contiennent des plots avec des chiralités opposés.

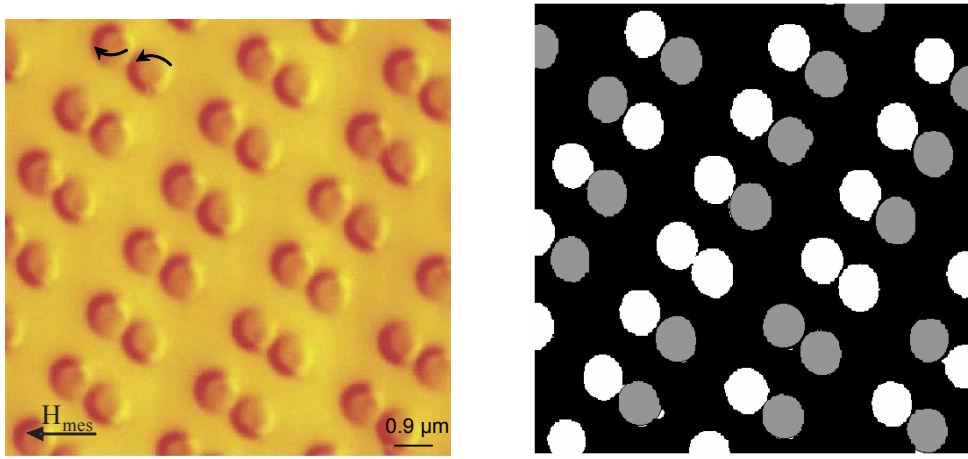


Fig.3.11 a) Image MFM sous un champ de 150 Oe d'un réseau avec des chaînes de deux plots le champ externe fait 45° avec l'axe de la chaîne b) représentation des chiralités des vortex sur l'image a

Afin d'expliquer ce comportement exhibé par les plots en fonction de la direction du champ externe, nous avons réalisé des simulations micromagnétiques pour des plots de 900 nm diamètre et 30 nm épaisseur en utilisant le code public OOMMF (voir annexe 3). Les paramètres de calcul sont ceux correspondant au NiFe ($M_s = 860 \cdot 10^3 \frac{A}{m}$, $A = 13 \cdot 10^{-12} \frac{J}{m}$) et le pas de maillage utilisé a été de 5 nm.

La distribution de l'aimantation juste avant la formation du vortex dans les deux plots qui constituent la chaîne est présentée sur la fig.3.12 quand le champ externe est appliqué parallèle à l'axe de la chaîne.

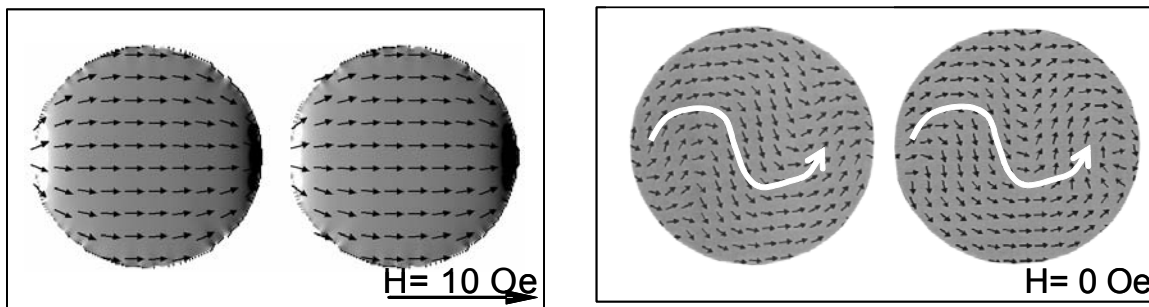


Fig.3.12 L'état magnétique d'une chaîne de deux plots avant la nucléation d'un vortex, obtenu par simulation micromagnétique

Comme on peut le voir, la distribution de l'aimantation dans les deux plots qui forment la chaîne est symétrique par rapport à la direction du champ appliqué. A cause de cette symétrie il n'y a aucune préférence du vortex pour une certaine chiralité. C'est pour cela que les deux plots de la chaîne peuvent avoir la même chiralité ou des chiralités différentes.

La situation est différente quand le champ est appliqué à un angle par rapport à l'axe de la chaîne. Nous avons analysé en particulier le cas quand le champ fait 45° par rapport à l'axe de la chaîne.

Les simulations micromagnétiques suggèrent que juste avant la nucléation du vortex, une déformation inhomogène de l'état quasi-monodomaine apparaît. Cette déformation consiste dans une distribution de l'aimantation à l'intérieur des plots qui ressemble à la lettre « S », avec deux courbures opposées, une qui est plus accentuée que l'autre (fig.3.13). Cet état s'appelle état « S » ou état buckling de deuxième degré et il favorise la nucléation d'un vortex à l'intérieur de chaque courbure [Guslienکو_02] [Hertel_03].

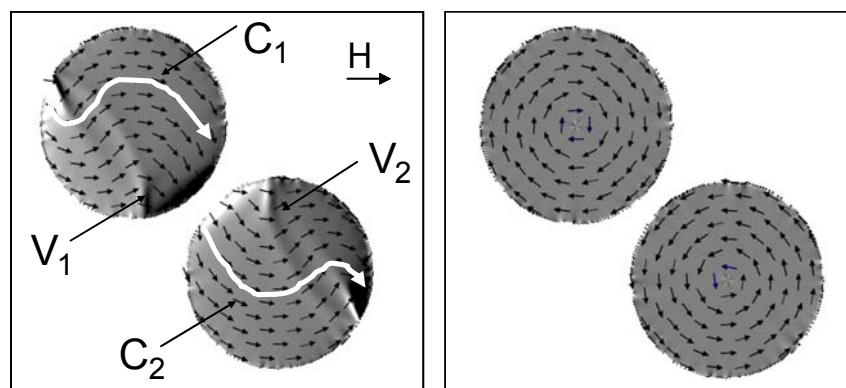


Fig.3.13 La formation des vortex avec des chiralités corrélés dans des chaînes de deux plots de Py avec le diamètre de 900 nm et l'épaisseur de 30 nm

Une corrélation est observée entre la distribution de l'aimantation: la courbure la plus accentuée du premier plot (C_1) est opposée à la courbure la plus accentuée du deuxième plot qui forme la chaîne (C_2). Ceci est causé par l'interaction entre les charges magnétiques apparues aux bords les plus rapprochés des deux plots. Cette corrélation va conduire à la formation des vortex de chiralités opposés dans les deux plots (V_1 et V_2).

3.5.3 Réseau des chaînes de plots arrangés en zig- zag

Le troisième système étudié est le réseau avec des plots arrangés en zig-zag. Le diamètre des plots est 900nm et les chaînes avec des plots en zig-zag sont séparées par une distance suffisamment grande pour éviter les éventuels interactions dipolaires entre les plots des chaînes voisines. On peut remarquer que ce système peut être divisé en chaînes de deux

plots. La distance entre les plots qui forment la chaîne de deux plots est de 100nm, comme pour le réseau des chaînes de deux plots.

Afin de réaliser la caractérisation MFM la même procédure a été utilisée que pour les autres systèmes étudiés auparavant.

Comme le montrent les images MFM, dans une chaîne avec des plots en zig-zag on peut trouver des plots avec les deux chiralités possibles pour un vortex (fig.3.14a). Pour faciliter l'observation des chiralités des vortex, sur l'image 3.14b on a représenté avec un plot blanc le vortex avec une chiralité clockwise et avec un plot noir le vortex avec la chiralité anticlockwise.

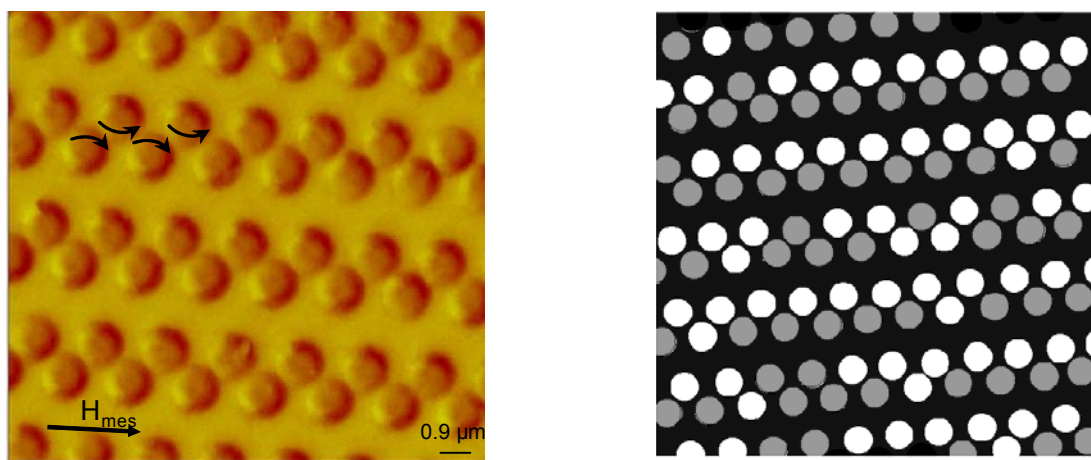


Fig.3.14 Image MFM réalisée sous champ pour le réseau de plots arrangés en zig-zag

Une corrélation importante existe entre les plots des deux lignes qui compose une chaîne en zig-zag : les plots qui sont dans la ligne en haut ont tous une chiralité clockwise et les plots qui sont dans la ligne en bas une chiralité anticlockwise. On dit dans ce cas que la chiralité des vortex dans une chaîne en zig-zag est corrélée. Une statistique a été réalisée sur des images MFM prises dans différents endroits du réseau et un pourcentage de 80% des vortex corrélés a été trouvé.

Le reste de 20% des plots ne suivent pas ces corrélations. Une explication pour leur comportement peut être les différents défauts structuraux qui apparaissent dans les plots pendant le processus de fabrication et qui peuvent imposer la nucleation d'un vortex dans un endroit précis. Afin de vérifier cette hypothèse des nouveaux échantillons ont été réalisés par lithographie avec faisceau d'électrons.

Les réseaux de plots sont identiques à ceux étudiés jusqu'à présent : le diamètre de plots est de 900 nm, l'épaisseur 30 nm mais elles sont fabriquées en Co.

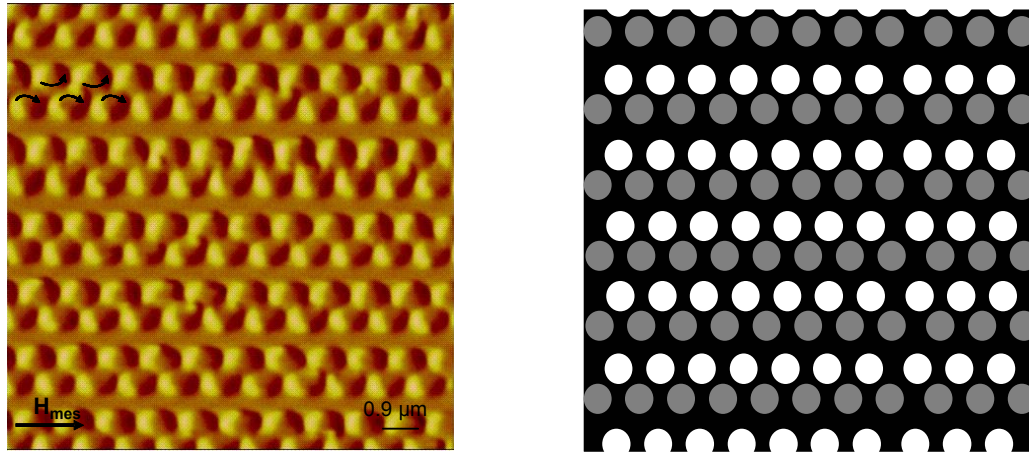


Fig.3.15 Image MFM réalisé sous champ pour le réseau de plots arrangés en zig-zag, dans un réseau réalisé par lithographie par faisceau d'électrons

Les études MFM réalisées nous ont permis d'obtenir un pourcentage de 93% des plots qui ont les chiralités corrélées. La fig.3.15 présente une région où la corrélation entre les chiralités des vortex a été de 100%. On observe un pourcentage plus important de corrélations pour les réseaux de Co par rapport aux réseaux de NiFe (Py) qui peut être du au fait que les interactions dipolaires en Co sont plus importantes car M_s est plus grande. Une autre explication pourrait être une meilleure qualité des plots (l'absence des défauts aux bords qui peuvent influencer la nucléation d'un vortex de chiralité précise indépendamment des interactions dipolaires).

Afin de déterminer l'origine de ces corrélations des simulations micromagnétiques ont été réalisées, utilisant le code public OOMMF pour les tailles des plots réels. Nous avons limité le numéro des plots dans une chaîne en zig-zag à 3 afin d'avoir un temps de calcul raisonnable.

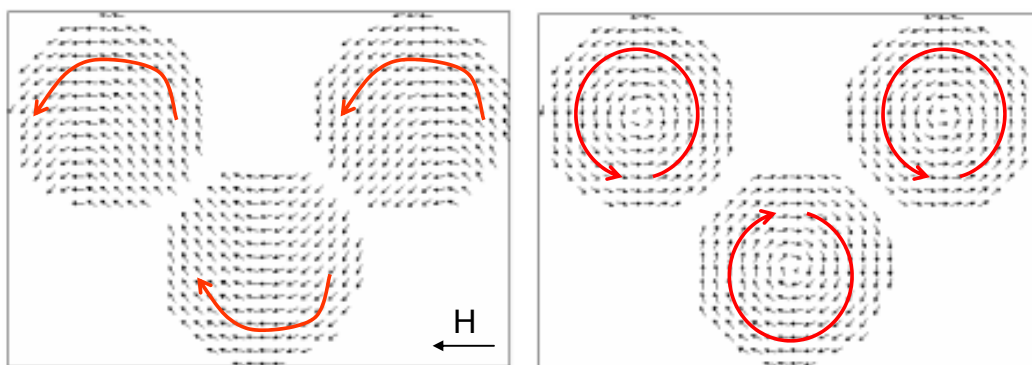


Fig.3.16 La configuration micromagnétique dans le cas d'une chaîne de plots en zig-zag en avant et après la formation d'un vortex

Par rapport aux chaînes de deux plots où la distribution de l'aimantation indique un état « S » ici l'aimantation semble à préférer une distribution à l'intérieur du plot qui ressemble à la lettre « C » (fig.3.16). Cet état s'appelle état « C » et son existence a été mise en évidence auparavant pour des rectangle de Py de 15nm épaisseur et de taille 500 nm x 250 nm par Zheng [Zheng_97] et pour des plots circulaires des différentes tailles par K. Gusliencko [Gusliencko_02] et R. Hertel [Hertel_03].

Dans notre système l'apparition de l'état « C » avant la nucléation du vortex est due à l'attraction entre les charges magnétiques de signe opposé des plots voisins et de la distribution particulière des plots dans la chaîne. L'apparition d'un état « C » semble être préféré à un état « S » à cause du nombre plus important des voisins avec lesquels un plot interagit par rapport au cas des chaînes de deux plots.

Toujours à cause de l'interaction entre les charges magnétiques aux bords des plots la courbure du « C » est opposée dans les plots de la ligne en haute par rapport aux plots qui forment la ligne en bas. Comme la nucléation du vortex est favorisée à l'intérieur de la courbure on obtient la corrélation des chiralités des vortex observées avec le MFM.

Le pourcentage des plots qui ont les chiralités des vortex corrélées dans le réseau de chaînes en zig-zag est plus important que dans le réseau de chaînes de deux plots. Ce résultat est compréhensible si on tient compte du fait que le nombre des voisins d'un plots est double dans une chaîne en zig-zag ce qui conduit à des interactions dipolaires plus fortes et il est en accord avec les observations que le renversement de l'aimantation est moins prédisposé de passer par la nucléation d'un double vortex en comparaison avec le cas des plots arrangés dans des chaînes des deux plots où l'existence d'un état « S » avant la nucléation du vortex peut favoriser l'apparition du vortex dans deux positions opposées dans le plot.

Il faut ajouter ici que la taille relative large de nos plots a été choisie comme un compromis entre la nécessité de bien voir le vortex déplacé et donc sa chiralité et évité la nucléation d'un double vortex.

3.5.4. Réseau de plots arrangés dans des hexagones

Comme dernière application du concept de contrôle des chiralités des vortex, nous avons réalisé un réseau avec des plots arrangés dans une structure hexagonale.

Cette structure hexagonale peut être divisée dans des chaînes de plots en zig- zag mais séparés par une distance plus faible.

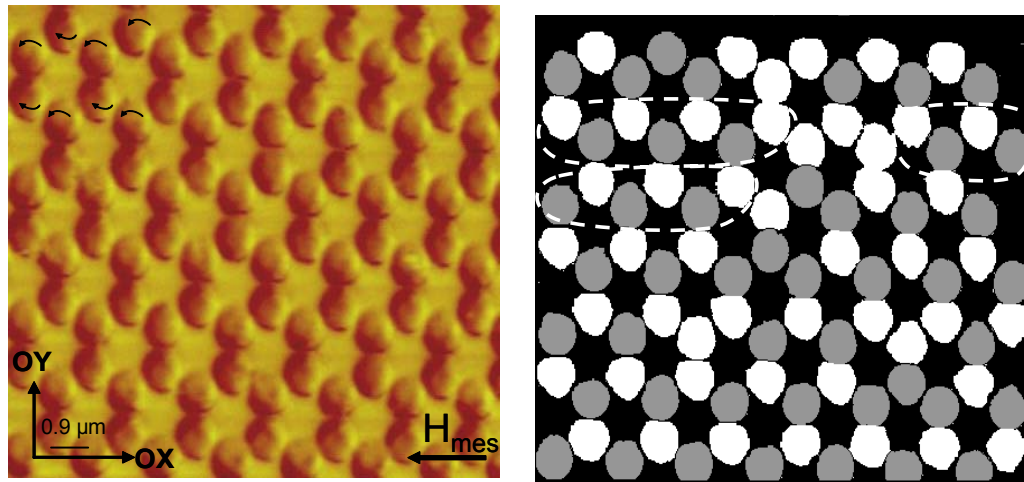


Fig.3.17 Image MFM d'un réseau hexagonal quand le champ est appliqué suivant la direction OX

Dans ce cas les plots ont une distribution de l'aimantation avant la formation du vortex semblable à celle trouvé pour les plots qui forment les chaînes en zig-zag. Une fermeture de flux global sur toute la chaîne conduit à la formation des vortex des chiralités opposés dans les deux lignes qui forment la chaîne.

Les études MFM montrent que 85% des vortex sont corrélés et tournent dans des directions opposées dans des chaînes en zig-zag (fig.3.17). C'est en fait un pourcentage identique avec celui trouvé dans le cas des chaînes de plots en zig-zag.

Quand on applique le champ perpendiculairement à la direction précédente, donc suivant la direction OY, les images MFM ne montrent aucune corrélation entre les chiralités des plots qui forment le réseau (fig.3.18).

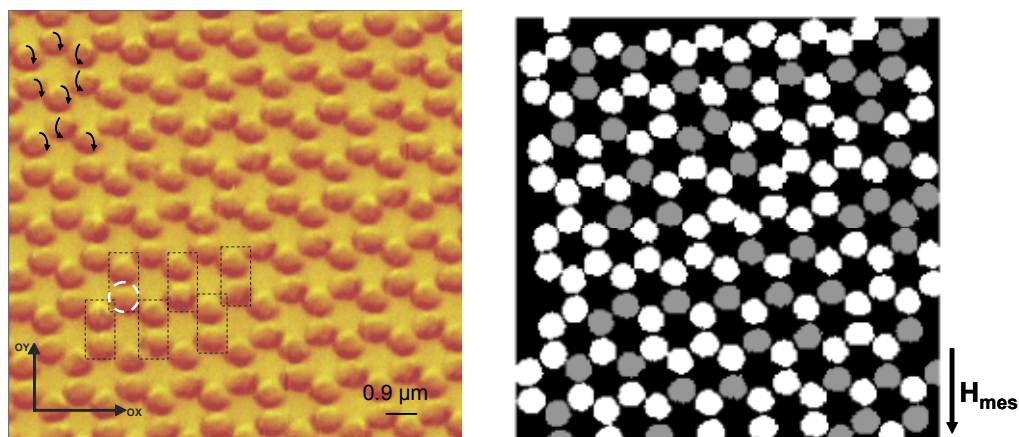


Fig.3.18 Image MFM d'un réseau hexagonal quand le champ est appliqué suivant la direction OY

Afin d'expliquer ce comportement il faut remarquer que ce n'est plus possible de diviser le réseau en chaînes de plots en zig-zag, chaînes parallèles à la direction du champ. Par contre, on peut considérer, dans la direction du champ, qu'il est formé par des chaînes de deux plots serrés couplés entre elles et déplacés sur la verticale l'un contre l'autre (voir image 3.18). Dans ce cas un plot qui forme une chaîne va interagir avec la même intensité avec les deux plots des chaînes voisines qui sont disposées symétriquement par rapport à la direction du champ appliqué. A cause de cette symétrie, le vortex n'a pas de préférences pour nucléer avec une chiralité clockwise ou anticlockwise donc on explique ainsi la distribution aléatoire des chiralités.

3.6 L'influence des interactions dipolaires sur la dépendance angulaire des champs de nucléation et d'annihilation pour différents types de structures

Pour des systèmes de taille finie, les interactions dipolaires déterminent des différents processus de retournement en fonction de la direction d'application du champ externe [Stamps_99], [Grundler_99]. Ceci peut se manifester dans les systèmes qui ont le vortex comme état fondamental par l'existence d'une anisotropie du champ de nucléation et d'annihilation.

L'anisotropie du champ de nucléation et d'annihilation a été observée sur des réseaux carrés de plots circulaires qui ont présenté des hystérésis de forme différente en fonction de l'angle sur lequel le champ externe a été appliqué [Prejbeanu_01].

Dans ce cas les deux champs H_n et H_a présentent des oscillations avec une période de 90° . Ils ont une valeur maximale à 0° et minimale à 45° . L'anisotropie du champ de nucléation étant plus importante que celle du champ d'annihilation.

En fonction de l'espacement entre les plots qui constituent le réseau, la valeur de l'anisotropie peut varier.

En augmentant l'espacement, l'anisotropie diminue ce qui souligne que l'origine de l'anisotropie quadratique du champ de nucléation est due aux interactions dipolaires entre les inhomogénéités magnétiques de la configuration de l'aimantation à l'intérieur des plots [Prejbeanu_02].

Une anisotropie similaire est présente pour des chaînes des plots serrés comme sur la fig.3.19.

Les courbes sur la figure correspondent aux réseaux des chaînes des plots de Py de diamètre de 800 nm et espacement entre les plots de 100 nm. Le champ magnétique externe a été appliqué parallèle à la chaîne (la ligne pointillée sur la figure) et perpendiculairement à la chaîne [Novosad_02].

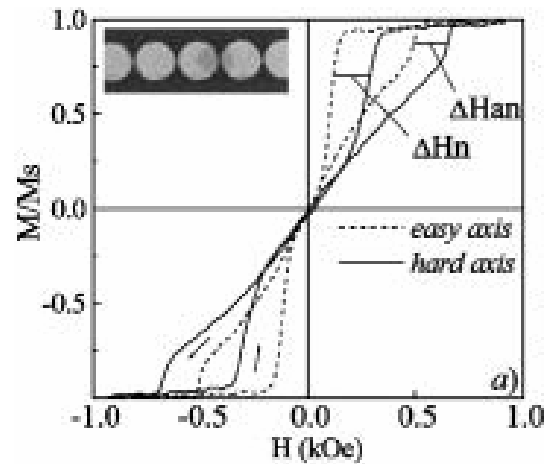


Fig.3.19 Courbes d'aimantation mesurées par effet Kerr sur des chaînes de plots de Py de diamètre 800 nm et espacement 100 nm [Novosad_02]

Nous allons montrer par la suite que cette anisotropie uniaxiale du champ de nucléation et du champ d'annihilation est présente également dans les systèmes que nous avons étudiés jusqu'à présent.

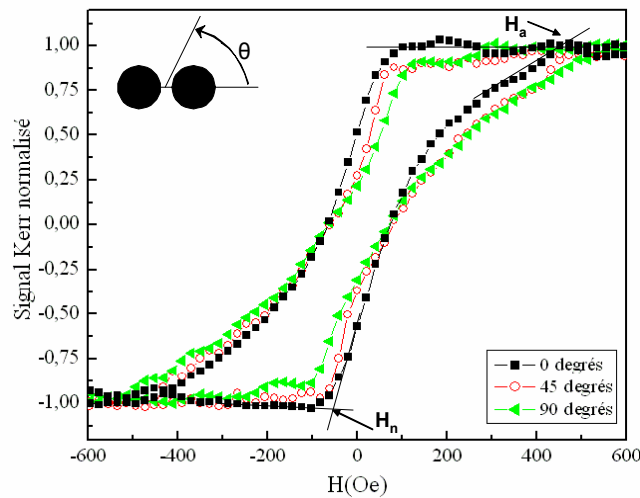


Fig.3.20 Courbes d'hystérésis mesurées pour les chaînes des deux plots quand le champ externe est appliqué à 0, 45, 90 degrés par rapport à l'axe de la chaîne

Les valeurs des champs de nucléation et du champ d'annihilation ont été déduites à partir des courbes d'hystérésis mesurées avec l'aide d'un MOKE. Les courbes mesurées pour le réseau de chaînes de deux plots quand le champ magnétique externe est appliqué à 0, 45, 90 degrés par rapport à l'axe de la chaîne sont montrées sur la fig.3.20. Le champ de nucléation H_n correspond à la diminution brusque de l'aimantation, en réduisant le champ magnétique à partir de la saturation négative. En augmentant le champ magnétique vers des valeurs positives le vortex sera expulsé au champ d'annihilation H_a .

La dépendance angulaire du champ de nucléation et d'annihilation dans le cas du réseau constitué des chaînes de deux plots d'épaisseur 30nm est donnée sur la fig.3.21. La variation angulaire du H_a et H_n montre bien l'existence d'une anisotropie uniaxiale du champ de nucléation et d'annihilation.

Le champ de nucléation le plus faible en valeur absolue a été obtenu quand le champ externe est parallèle à l'axe de la chaîne (0°). Ce comportement s'explique par la présence d'un champ d'interaction dipolaire important entre les deux plots qui forment la chaîne, champ qui stabilise l'état monodomaine en retardant ainsi la nucléation du vortex. Le même champ d'interaction dipolaire va faciliter l'annihilation du vortex est ainsi on explique le faible champ d'annihilation exhibé par les chaînes de deux plots quand le champ est parallèle à la chaîne.

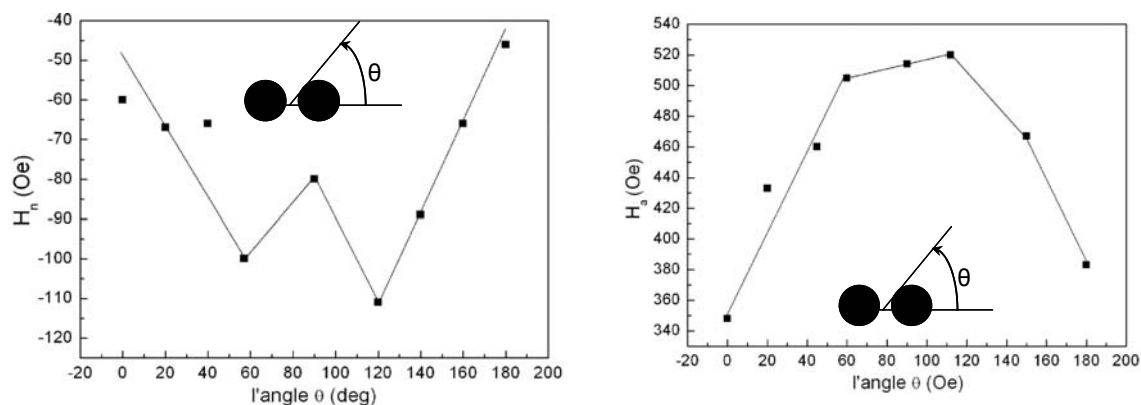


Fig.3.21 Dépendance angulaire du champ de nucléation et d'annihilation pour des chaînes de deux plots

Le plus grand champ de nucléation en valeur absolue a été mesuré quand l'angle entre le champ et l'axe de la chaîne est de 60° et 120° . Autrement dit en diminuant le champ de la saturation, la nucléation du vortex a lieu à un champ proche de celui de saturation. Ce comportement s'explique par le fait que les interactions dipolaires sont plus faibles dans cette configuration par rapport au cas précédent (angle 0° entre le champ et l'axe de la chaîne) à cause du fait que les plots ne sont pas parfaitement alignés dans la direction du champ. Donc les interactions dipolaires vont stabiliser moins longtemps l'état monodomaine.

On observe également que le champ de nucléation est plus petit en valeur absolue pour un angle de 90° entre le champ appliqué et l'axe de la chaîne par rapport au champ de nucléation quand le champ est appliqué à 60° . Ceci peut s'expliquer par l'existence d'une interaction dipolaire entre les plots de la chaîne qui déstabilise l'état monodomaine. Mais dans la direction du champ, l'interaction dipolaire entre des chaînes voisines va renforcer l'état

monodomaine. Ceci conduit à une interaction dipolaire total plus forte quand le champ est appliqué perpendiculairement à la chaîne par rapport au cas quand le champ est appliqué à 60° à cause de la séparation plus petit entre les plots dans la direction du champ appliqué.

Pour mieux comprendre le rôle joué par les interactions dipolaires dans le comportement magnétique des réseaux de plots, nous allons comparer maintenant la variation du champ de nucléation et du champ d'annihilation pour 4 systèmes différents : chaînes de 2 plots, chaîne de plots en zig-zag, une structure des plots isolés (la séparation entre les plots est de 700 nm) et une structure où les plots ont été arrangés dans des hexagones. Le champ magnétique utilisé pendant les mesures a été appliqué dans le plan de l'échantillon suivant deux directions : à 0° quand le champ a été parallèle avec la chaîne des plots et à 90° quand le champ magnétique est perpendiculaire à la chaîne.

Sur la fig.3.22 sont présenté la dépendance du champ de nucléation H_n et du champ d'annihilation H_a du vortex en fonction du type de réseau.

Comme on peut voir sur la fig.3.22a, le passage d'un réseau carré à un réseau 2 plots, zig-zag et hexagonale conduit à la diminution dans la valeur absolue du champ de nucléation et du champ d'annihilation quand le champ externe est appliqué parallèle à l'axe des chaînes.

Dans le réseau composé des chaînes de deux plots, la séparation entre les plots ($S=100\text{nm}$) est plus petit que dans le cas du réseau carré ($S=700\text{ nm}$) donc les interactions dipolaire sont plus fortes ce qui stabilise l'état monodomaine et conduit à un champ de nucléation plus faible en valeur absolue.

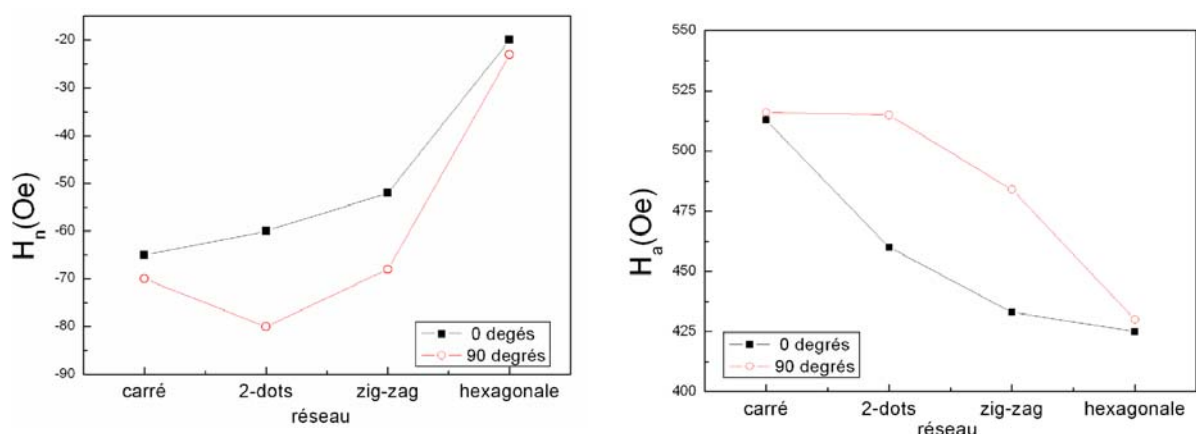


Fig.3.22 Champ de nucléation et champ d'annihilation suivant les deux directions d'application du champ externe (le long de la chaîne - 0° degré et perpendiculaire à la chaîne- 90° degrés) pour les 4 systèmes étudiés. L'épaisseur des plots est de 30nm

Le champ nécessaire à nucléer des vortex dans le réseau zig-zag est encore plus petit en valeur absolue que celui du réseau de chaînes des deux plots. Ceci peut s'expliquer par le fait que même si les interactions entre les plots les plus proches sont plus faibles (les plots ne sont pas alignés parallèlement avec la direction du champ), les plots forment des chaînes plus longues ce qui conduit à une interaction totale plus forte.

Comme le réseau avec les plots arrangés dans un hexagone peut être divisé dans des chaînes de plots en zig-zag qui sont plus rapprochées sur la verticale les interactions dipolaires seront plus fortes donc le champ de nucléation sera plus faible en valeur absolue que celui pour le réseau avec des plots en zig-zag.

Le champ d'annihilation diminue lors du passage d'un réseau carré à un réseau de chaînes de deux plots, chaînes de plots en zig-zag et réseau hexagonal, donc avec l'augmentation des interactions dipolaires entre les plots voisins. Ce comportement est compréhensible si on tient compte du fait que les interactions dipolaires essaient de stabiliser l'état monodomaines dans les plots, donc sera plus facile d'annihiler les vortex.

Quand le champ extérieur est appliqué perpendiculairement aux chaînes de plots on observe une augmentation du champ de nucléation en valeur absolue par rapport au cas quand le champ externe était parallèle aux chaînes.

Dans le cas des chaînes de deux plots le champ dipolaire d'un plot qui agit sur son voisin va déstabiliser l'état monodomaine de ce plot. Par conséquence, il sera plus facile de nucléer un vortex par rapport au réseau carré ou au réseau de deux plots quand le champ était parallèle à l'axe de la chaîne.

Pour la structure en zig-zag, quand le champ externe est appliqué perpendiculairement aux chaînes, on divise la chaîne dans des chaînes de deux plots parallèles. Dans ce cas l'interaction dipolaire entre les deux plots de la chaîne stabilise l'état monodomaine comme dans le cas du champ externe parallèle aux chaînes. Par contre, à cause de la distance plus grande, dans la direction du champ, entre les chaînes des deux plots (distance égale à la séparation entre deux chaînes en zig-zag) par rapport à la distance entre les chaînes des deux plots quand le champ était parallèle à la chaîne en zig-zag, les interactions dipolaires totales seront moins forte. Ceci conduit à un champ de nucléation plus grand en valeur absolue par rapport au cas quand le champ était parallèle à la chaîne.

Pour le réseau avec les plots arrangés en hexagone, les interactions dipolaires sont les mêmes dans les deux directions à cause de la symétrie du système ce qui conduit aux mêmes valeurs du champ de nucléation et d'annihilation.

Concernant le champ d'annihilation on retrouve aussi des valeurs différentes en fonction de la direction de l'application du champ externe exceptant le cas de la structure carré et hexagonale où la direction de l'application du champ n'a pas influencé la valeur du H_a . Le champ d'annihilation est plus petit quand le champ est appliqué perpendiculairement à la chaîne, donc avec des interactions moins fortes.

3.7 Conclusions

Dans le cadre de ce chapitre, nous avons étudié l'influence des interactions dipolaires sur le sens de retournement de l'aimantation à l'intérieur des plots circulaires de Py de 900nm diamètre et 30nm épaisseur, arrangés dans différentes configurations.

Pour un réseau formé des chaînes de deux plots, les études MFM montrent que, quand le champ externe est appliqué à 45° par rapport à l'axe de la chaîne une corrélation entre les chiralités des vortex qui apparaissent dans les plots existe. Cette corrélation consiste dans la présence dans ces deux plots des vortex des chiralités différentes. Les études MFM sont soutenues par les simulations micromagnétiques. La corrélation a été expliquée avec l'aide des interactions dipolaires qui semblent à déterminer l'aimantation de préférer des états « S » avec la courbure plus prononcée opposée dans les deux plots, courbure où les vortex vont se former. Cette corrélation est absente si le champ externe est appliqué perpendiculairement à la chaîne des plots.

Une corrélation plus importante a été obtenue dans le cas des plots arrangés dans un réseau zig-zag et un réseau hexagonal (qui peut être considéré comme un réseau en zig zag mais avec des espacements plus petits entre les chaînes) à cause des interactions dipolaires plus fortes. La corrélation consiste dans le fait que les plots dans une ligne qui compose la chaîne zig-zag ont tous la même chiralité et les plots de l'autre ligne ont une chiralité opposée. Dans ce cas le champ a été appliqué parallèle à la chaîne des plots. Si le champ est appliqué perpendiculairement aux chaînes qui forment la structure en hexagone, la corrélation des chiralités disparaît.

Les mesures MOKE nous ont permis de mettre en évidence l'existence d'une anisotropie du champ de nucléation et d'annihilation. Cette anisotropie se manifeste par la variation du champ de nucléation et d'annihilation avec l'angle entre le champ et l'axe de la chaîne. Elle a été analysée plus en détaille dans le cas des chaînes de deux plots. Le champ de nucléation augmente en valeur absolue avec l'angle, présentant deux valeurs maximales à 60° et 120° . Le champ d'annihilation augmente en valeur jusqu'à le champ fait un angle de 60° avec l'axe de la chaîne ensuite il diminue.

L'étude MOKE a été réalisée pour les réseaux de plots en zig-zag et en hexagone en appliquant le champ externe le long des chaînes (direction 0°) et perpendiculairement à ces chaînes (direction 90°).

Pour la chaîne de plots en zig zag, une variation du champ de nucléation et du champ d'annihilation existe en fonction de l'angle sur lequel le champ externe est appliqué. Quand le champ externe est appliqué le long des chaînes, le champ de nucléation est plus petit en valeur absolue par rapport à celui obtenu quand le champ externe est perpendiculaire aux chaînes.

La structure des plots arrangés dans des hexagones est isotrope et on n'a pas trouvé d'anisotropie du champ de nucléation et d'annihilation.

En passant d'une structure de chaînes de deux plots à une structure en zig-zag et en hexagone, les interactions dipolaires entre les plots deviennent de plus en plus fortes, ce qui conduit à une augmentation du champ de nucléation et une diminution du champ d'annihilation.

Références bibliographiques du chapitre :

- | | |
|-------------|---|
| [Bardou_96] | N. Bardou, B. Bartenlian, C. Chappert, J. Appl. Phys 79 , 5848 (1996) |
| [Buda_01] | L. Buda, L. Prejbeanu, M. Demand, U. Ebels, K. Ounadjela, IEEE Trans. Magn. 37 , 2061 (2001) |
| [Buda_01_1] | L. Buda, « Développement d'un code de calcul micromagnétique 2D et 3D: Application à des systèmes réels de types films, plots et fils », thèse, Univ. L. Pasteur, Strasbourg (2001) |

- [Buda_02] L. Buda, L. Prejbeanu, U. Ebels, K. Ounadjela, Comp. Mat. Science, **24**, 181-185, (2002)
- [Chou_95] S.Y.Chou, P.R. Krauss, P.J. Renstrom, Appl. Phys. Lett. **76**, 3114 (1995)
- [Chou_97] S. Y. Chou, P. R. Krauss, P.J. Renstrom, J. Vac. Sci. Technol. B **14**, 4129 (1996)
- [Chou_98] S.Y.Chou et al, J. Vac. Sci. Technol. **16**, 3825 (1998)
- [Cowburn_99] R. Cowburn, D. K. Koltsov, A. O. Adeyeye, M.E. Welland, Phys. Rev. Lett. **83**, 1042, (1999)
- [Cowburn_98] R. Cowburn, A. O. Adeyeye, M.E. Welland, Phys. Rev. Lett. **81**, 5414, (1998)
- [Demand_99] M. Demand, M. Hehn, K. Ounadjela, J.V.Kim, A. Vagov, R.L. Stamps J. Appl. Phys. **85**, 5498 (1999)
- [Demand_00] M. Demand, M. Hehn, K. Ounadjela, R. Stamps, J.Appl. Phys. **87**, 5111-5113, (2000)
- [Fruchart_99] O. Fruchart, J. P. Nozières, W. Wernersdorfer, D. Givord, Phys. Rev. Lett. **82**, 1305 (1999)
- [Grundler_99] D. Grundler, G. Meyer, K. Broocks, Ch Heyn, J. Appl. Phys. **85**, 6175, (1999)
- [Gusliencko_02] K. Gusliencko, V. Novosad, Y. Otani, H. Shima, Phys. Rev. B **65**, 024414 (2002)
- [Hanson_98] M. Hanson, C. Johansson, B. Nilsson, P. Isberg, R. Wappling, J. Appl. Phys. **85**, 2793 (1998)
- [Hehn_96] M. Hehn, O. Ounadjela, J. P. Bucher, C. Chappert, Science **272**, 1782 (1996)
- [Hertel_03] R. Hertel, J. Ha, J. Kirschner, Phys. Rew. B **67**, 224432 (2003)
- [Hillebrands_97] B. Hillebrands, C. Mathieu, C. Hartmann, M. Bauer, O. Buttner, S. Riedling, B. Roos, S. Demokritov, B. Bartenlian, C. Chappert, J. Magn. Magn. Matter. **175**, 10 (1997) ; C. Mathieu, C. Hatmann, M. Bauer, O. Butter, S. Riedling, B. Roos, S. Demokritov, B. Hillebrands, J. Appl. Phys. **81**, 4993 (1997)
- [Klaui_03] M. Klaui, C.A.F. Vaz, L.Lopez- Diaz, J.A.C Bland, J. Phys. Condens. Matter. **15**, R985, (2003)

- [Lebib_01] A. Lebib, S.P.Li, M. Natali, Y. Chen, J. Appl. Phys. **89**, 3892 (2001)
- [Mathieu_97] C. Mathieu, C. Hatmann, M. Bauer, O. Butter, S. Riedling, B. Roos, S. Demokritov, B. Hillebrants, Appl. Phys Lett. **70**, 2912 (1997)
- [Meier_98] G. Meier, M. Kleiber, D. Grundler, D. Heitmann, Appl. Phys. Lett. **72**, 2168, (1998)
- [Miramond_97] C. Miramond, C. Fermon, F. Rousseaux, D. Decanini, J. Magn. Magn. Mater. **165**, 500, (1997)
- [Natali_02] M. Natali, L. Prejbeanu, A. Lebib, L. Buda, K. Ounadjela, Y. Chen, Phys. Rev. Lett. **88**, 157203 (2002)
- [Novosad_02] V. Novosad, K. Gusliencko, H. Shima, Y. Otani, S. G. Kim, K. Fukamichi, N. Kikuchi, O. Kitakami, and Y. Shimada, Phys. Rev. B **65**, 060402(R) (2002)
- OOMMF Code publique : <http://math.nist.gov/oommf/>
- [Prejbeanu_01] L. Prejbeanu, thèse Université L. Pasteur, Strasbourg, (2001)
- [Prejbeanu_02] L. Prejbeanu, M. Natali, L. Buda, U. Ebels, A. Lebib, Y. Chen, K. Ounadjela, J. Appl. Phys. **91**, 7343, (2002)
- [Raabe_00] J. Raabe, R. Pulwey, R. Sattler, J. Appl. Phys. **88**, 4437-4439, 2000
- [Rybczynski_03] J. Rybczynski, U. Ebels, M. Giersig, Colloids and surface **219**, 1 (2003)
- [Rousseaux_95] F. Rousseaux, D. Decanini, F. Carcenac, E. Campbril, J. Vac. Sci. Technol B **13**, 2787, (1995)
- [Schneider_01] M. Schneider, H. Hoffmann, S. Otto, Th. Haug and J. Sweck, J. Appl. Phys. **92**, 1466-1472, (2002)
- [Schneider_02] M. Schneider, H. Hoffmann and J. Sweck, Appl. Phys. Lett. **79**, 3113-3115, (2001)
- [Shinjo_00] T. Shinjo, T. Okuno, R. Hassdorf, K. Shigeto, T. Ono, Science **289**, 930 (2000)
- [Stamps_99] R.L. Stamps and R.E. Camley, Phys. Rev. B **60**, 11694 (1999)
- [Wassermann_98] E.F. Wassermann, M. Thieleu, S. Kirsch, A. Pollmann, H. Weinforth, A. Carl, J. Appl. Phys. **83**, 1753 (1998)
- [Zheng_97] Y. Zheng and J.G. Zhu, J. of Appl. Phys. **81**, 5471 (1997)

Chapitre 4 : Magnétisme de réseaux des plots carrés

4.1 Introduction.....	88
4.2 Le cas d'un plot isolé.....	89
4.2.1 Les états fondamentaux d'un plot isolé.....	89
4.2.2 Contraste magnétique	90
4.3 Comparaison entre systèmes des plots carrés et circulaires.....	91
4.4 Description du système étudié.....	93
4.5 Calculs des interactions dipolaires provenant des tranchés et des plots voisins.....	94
4.6 L'état fondamental et l'état de la rémanence.....	96
4.6.1 Le contraste magnétique en faible champ.....	97
4.6.2 Contraste magnétique du à la couche de Co du tranchés.....	98
4.7 Magnétisme macroscopique des plots de Co : étude MOKE.....	99
4.7.1 Dépendance de la séparation S entre les plots.....	99
4.7.2 Dépendance angulaire.....	102
4.8 Magnétisme microscopique des plots de Co : étude MFM.....	104
4.8.1 Renversement de l'aimantation dans des réseaux des plots espacés.....	104
4.8.2 Renversement de l'aimantation dans des réseaux des plots serrés	105
4.8.3 La variation du champ de nucléation et d'annihilation du vortex.....	107
4.8.4 Corrélation de l'aimantation : aimantation en zig- zag.....	109
4.9. Conclusions.....	110
Références bibliographiques du chapitre.....	111

4.1 Introduction

Dans le chapitre précédent nous nous sommes concentré sur l'étude des systèmes des plots circulaires de diamètre 800 nm, plus précisément sur l'influence des interactions dipolaires sur leur comportement magnétique. Cette étude sera continuée dans ce chapitre, pour des plots de forme carrés et de taille plus petite, 200 nm.

La modification de la taille et de la forme des plots induit des modifications dans leur comportement magnétique.

L'influence de la taille se manifeste sur les états d'équilibre [Cowburn_98a] [Buda_02]. Comme nous avons montré dans le chapitre 3, les plots circulaires peuvent avoir en champ nul deux états magnétiques stables : l'état monodomaine et l'état vortex. Dans le cas d'un plot carré des états stables comme: l'état « buckle », « flower », « leaf » ou vortex peuvent apparaître, en fonction des dimensions des plots. En augmentant beaucoup plus la taille, la stabilisation d'un double vortex devient possible [Dunin-Borkowski_99] [Shi_00]. La stabilisation d'un certain état ne dépend pas seulement de la taille mais également de la forme des plots.

Pour des plots de taille relativement grande (800 nm), l'influence de la forme (circulaire/ carré) sur leurs propriétés magnétiques a été très clairement mise en évidence dans des études antérieures [Novosad_03]. Ces études ont montré que le passage d'un plot circulaire vers un plot carré détermine la modification des champs de renversement. Par contre l'influence est très faible sur l'intensité des interactions dipolaires qui agissent entre les plots.

Notre étude est concentrée sur des plots carrés de Co qui ont comme état fondamental l'état vortex. Ils sont arrangés dans des réseaux carrés avec différents espacements entre les plots. Tout d'abord nous allons nous intéresser au mécanisme de retournement dans des plots quasi-isolés. Ensuite l'influence des interactions dipolaires sur les champs de nucléation et d'annihilation d'un vortex sera étudiée. Toutes ces études seront réalisées par mesures magnétométriques d'effet Kerr et des mesures MFM.

4.2. Le cas d'un plot isolé

Afin de mieux comprendre le comportement des réseaux de plots carrés en interaction dipolaire, les états stables en fonction de la taille des plots et le renversement d'un plot isolé seront résumé à partir de la littérature.

4.2.1 Les états fondamentaux d'un plot isolé

Par rapport aux plots circulaires décrites par deux états magnétiques stables : l'état vortex et l'état monodomaine, il existe quatre états stables pour un plot carré. Ces états en fonction des dimensions du plot sont: l'état vortex, état « buckle », état « flower », état « leaf ». Ils sont indiqués sur la fig. 4.1. Ces états ont été mis en évidence par simulations micromagnétiques réalisées par Cowburn [Cowburn_98a] sur des plots carrés de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$.

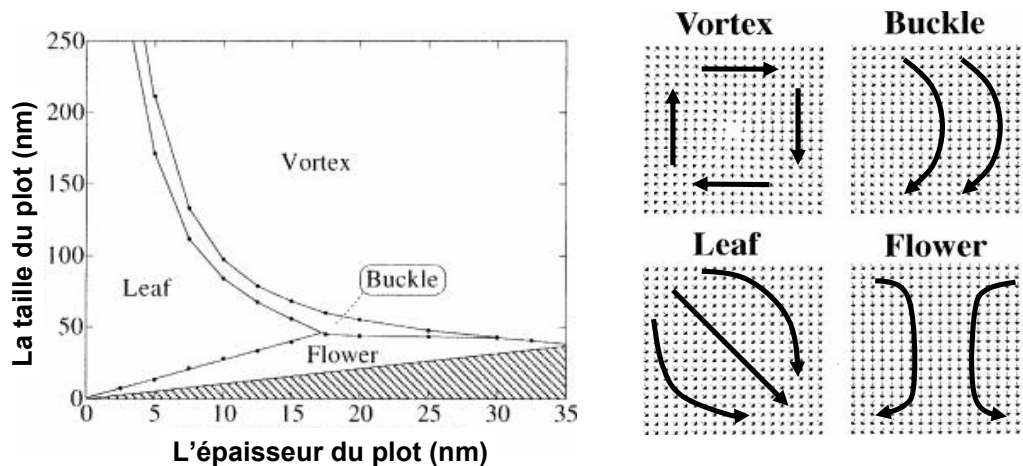


Fig. 4.1 Diagramme de phase réalisé pour un plot carré de NiFe qui montre l'état fondamental du plot en fonction de ses dimensions [Cowburn_98]

Parmi ces quatre états, seul l'état vortex présente une bonne fermeture de flux le long des bords du plot et l'aimantation au cœur du vortex sort perpendiculairement au plan ce qui assure une importante énergie d'échange et une faible énergie magnétostatique. Les états « buckle », « leaf » et « flower » présentent une fermeture de flux de moins en moins importante ce qui conduit à une diminution de l'énergie d'échange et une augmentation de l'énergie magnétostatique. La dépendance de ces états fondamentaux de la taille et de l'épaisseur du plot est présentée dans le diagramme de phase du fig.4.1, diagramme obtenu suite à des simulations micromagnétiques [Cowburn_98a].

Dans le cas des plots caractérisés par une taille supérieure à 100 nm et une épaisseur supérieure à 10 nm l'état fondamental est l'état vortex. Ce comportement est semblable à celui d'un plot circulaire, qui lui aussi a comme état fondamental l'état vortex pour les mêmes dimensions. Si on diminue les dimensions du plot, la valeur de la densité d'énergie d'échange augmente et à partir de certaines valeurs critiques elle devient plus grande que la densité de l'énergie magnétostatique. A ce moment le vortex n'est plus l'état fondamental et le plot carré préfère l'un des états fondamentaux « *flower* », « *leaf* » ou « *buckle* » où l'aimantation reste dans le plan du plot.

Les états « *leaf* » et « *flower* » sont tous les deux des états quasi- monodomaines. Un système va préférer un état ou l'autre en fonction de son rapport épaisseur sur taille, indépendamment du matériau [Cowburn_98c]. La différence d'énergie entre ces deux états apparaît à cause de l'inhomogénéité de l'aimantation aux bords du plot qui détermine une anisotropie configurationnelle (voir chapitre 1).

4.2.2 Contraste magnétique

Les études magnétiques antérieures se sont concentrées surtout sur des plots carrés de taille latérale assez grande 800 nm et d'épaisseur 50 nm, plots qui ont l'état vortex comme état fondamental [Novosad_03]. Le contraste magnétique associé à ces plots en champ nul et à la saturation est présenté sur la figure 4.2.

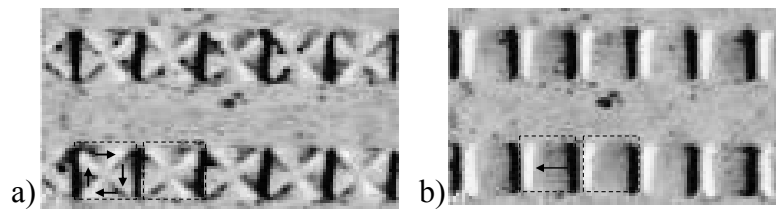


Fig.4.2 Image MFM des réseaux des plots dans un état : a) vortex et b) monodomaine. La taille d'un plot est de 800 nm et son épaisseur de 50 nm [Novosad_03]

Dans le cas d'un vortex, la rotation de l'aimantation suivant les bords de plots va diminuer les charges de surface et va conduire à l'apparition d'un contraste dipolaire noir-blanc en alternance suivant les diagonales. Dans le reste du plot il n'y a pas de contraste magnétique (fig. 4.2a).

En appliquant un champ magnétique suffisamment fort parallèle à un bord du plot, il passera dans un état monodomaine. Le contraste magnétique associé à un état monodomaine

est présenté sur la fig.4.2b. Il consiste dans un contraste dipolaire noir- blanc, aux bords du plot dans la direction du champ, donné par l'accumulation des charges de surface.

4.3. Comparaison entre systèmes des plots carrés et circulaires

Des plots carrés et circulaires de même taille ont été caractérisés par Novosad [Novosad_03] afin de déterminer si la forme des plots peut induire des changements dans leurs propriétés magnétiques comme par exemple les champs d'annihilation ou de nucléation d'un vortex.

L'étude a été réalisée par magnétométrie à effet Kerr et les plots circulaires et carrés de NiFe ont une taille 800 nm et épaisseur 50 nm. Ils sont arrangés dans des chaînes avec des espacements bord- à- bord qui varient entre 100 nm et 800 nm.

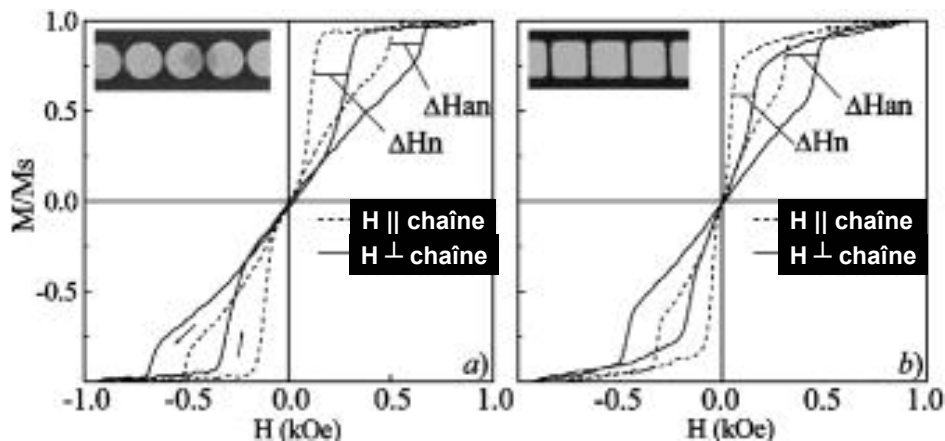


Fig4.3 Courbes d'hystérésis obtenues par effet Kerr magnéto- optique pour a) plots circulaires et b) plots carrés. La dimension des plots de NiFe est de 800 nm, l'épaisseur de 50 nm et l'espacement de 100 nm [Novosad_03]

a) courbe $M(H)$

Sur la fig.4.3 sont présentées les courbes d'hystérésis correspondantes à des chaînes des plots carrés et circulaires, avec l'espacement entre les plots de 100 nm quand le champ magnétique externe a été appliqué parallèle et perpendiculaire à la chaîne. Comme on peut voir sur la fig.4.3 les courbes d'hystérésis sont des courbes caractérisées par une rémanence nulle qui est due à la présence d'un vortex en champ nul. L'état vortex est en fait l'état

fondamental pour cette taille de plots conformément au diagramme de phase présenté sur la fig.4.1.

En comparant la forme des courbes d'hystérésis on observe que celle-ci est influencé par la forme des plots avant la nucléation du vortex. Les plots carrés, à cause de leur géométrie, favorisent l'alignement des moments magnétiques le long des bords quand le champ magnétique décroît de la saturation. Ceci conduit à une configuration non- uniforme avant la nucléation du vortex, qui se manifeste par une diminution plus importante de la valeur de l'aimantation.

b) variation du H_n et H_a avec la direction du champ H_{ext}

Pour les deux types de plots, Novosad et al. [Novosad_03] ont observé que le champ de nucléation en valeur absolue mesuré quand le champ magnétique est appliqué parallèle à la chaîne, est inférieur à celui mesuré quand le champ est appliqué perpendiculairement à la chaîne. Le champ d'annihilation a le même comportement. Ce comportement a été expliqué par le fait que les interactions dipolaires qui sont plus intenses quand le champ est appliqué parallèle à la chaîne ont tendance à stabiliser l'état monodomaine ce qui fait la nucléation d'un vortex plus difficile donc à des champs plus petits. Ceci est en concordance avec les résultats que nous avons également obtenus sur des plots circulaires et qui sont présenté dans le chapitre 3 (voir section 3.6)

c) variation du champ H_n et H_a avec la séparation entre les plots et avec leur forme

Quand la distance entre les plots devient plus petite que la dimension du plot, les interactions dipolaires entre les plots voisins deviennent très importantes et doivent être prises en considération. Elles sont à l'origine de la diminution du champ de nucléation et d'annihilation en valeur absolue avec la diminution de l'espacement entre les plots qui forment le réseau, comportement qui a été observé pour les deux types des plots [Novosad_03].

En comparant ces valeurs on observe que les champs de nucléation et d'annihilation en valeur absolue pour les plots carrés ont des valeurs plus faibles par rapport aux plots circulaires de même taille. Ce comportement est présenté sur la fig. 4.4.

L'explication de ce comportement se repose sur l'effet de la forme des plots. Pour les plots circulaires l'état vortex est favorisé par la géométrie de la structure circulaire du plot qui permet la circulation de l'aimantation \vec{M} , l'accumulation des charges aux bords étant ainsi

évitée. Dans l'état vortex l'énergie d'échange et l'énergie dipolaire est stockée principalement au cœur du vortex, cœur qui a un diamètre de l'ordre de quelques longueurs d'échange.

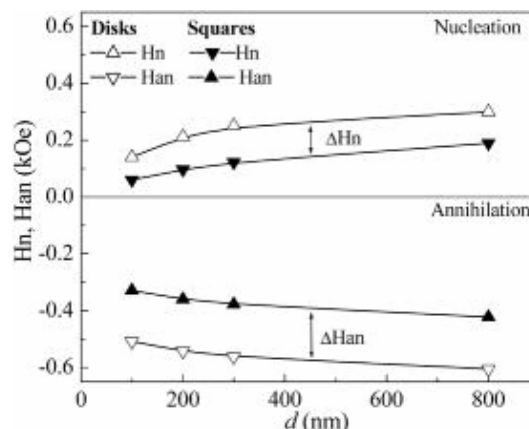


Fig.4.4 La dépendance du champ de nucléation et du champ d'annihilation avec l'espacement entre les plots. La taille des plots de NiFe est de 800 nm, l'épaisseur 50 nm [Novosad_03]

Par contre dans le cas des plots carrés la formation du cœur de vortex est accompagnée par un surplus des énergies d'échange et magnétostatique lié à la présence des parois de 90°. Les spins d'un plot carré sont obligés de tourner à 90° le long du bord du plot pour éviter les charges de surface. La dimension de la région (paroi) où les spins tournent est donnée par la compétition entre les énergies d'échange et magnétostatique qui sont dépendantes de la dimension et de la forme des plots. Cette région va déterminer des charges de volume à l'intérieur de la particule qui conduisent à l'augmentation de l'énergie totale. Ceci explique la diminution du champ de nucléation et du champ d'annihilation en valeur absolue par rapport aux plots circulaires [Novosad_03].

4.4. Description du système étudié

Le système que nous avons étudié est constitué des réseaux de plots carrés de Co, de taille latérale 200 nm x 200 nm et épaisseur 20 nm. Les plots sont protégés par une couche de Pt d'épaisseur 20 Å. Ils sont disposés dans des réseaux de symétrie carrée, de taille 100x100µm².

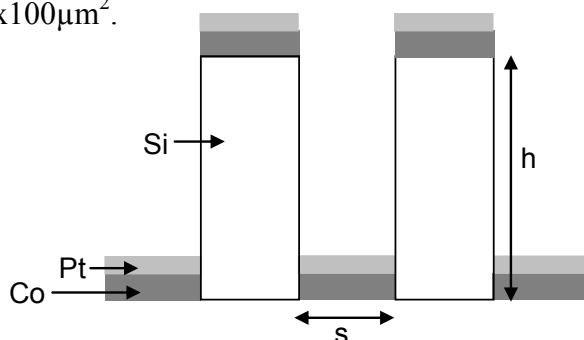


Fig.4.5 Schéma d'un réseau des plots obtenu par la déposition d'une couche continue sur un substrat pré-gravé

La séparation entre les plots, varie entre 50 nm et 350 nm avec un pas de 50 nm.

Les échantillons ont été réalisés par le dépôt d'une couche de Co sur un substrat pregravé (fig.4.5). La hauteur, h des piliers de Si est de 300 nm.

La méthode de fabrication est détaillée dans le chapitre 2. L'étude AFM de la morphologie des plots (voir image 4.6) indique une très bonne qualité des réseaux.

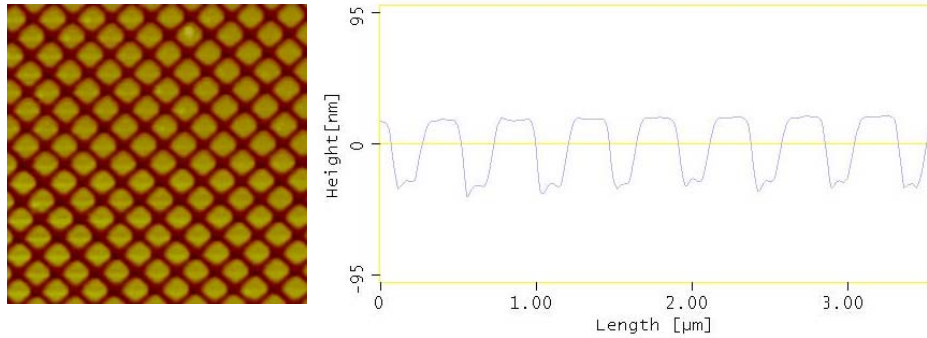


Fig.4.6 Image topographique de $3\mu\text{m} \times 3\mu\text{m}$, obtenue en AFM d'un réseau de plots de Co, après un scan à 45°

4.5 Calculs des interactions dipolaires provenant des tranchées et des plots voisins

Pendant le processus de pulvérisation, qui se réalise dans une direction perpendiculaire au substrat pregravé, le Co ne va pas se déposer seulement au sommet des plots de Si mais également dans l'espace entre les plots carrés (dans les tranchées). Ceci conduit à l'apparition d'une couche magnétique dans les tranchées à la proximité des plots. La séparation entre cette couche magnétique et les plots sur la verticale est de 300 nm qui est en fait la hauteur des plots de Si.

Nous allons vérifier par la suite si la couche magnétique qui se trouve dans les tranchées peut influencer le comportement magnétique des plots. Pour ceci nous avons divisé la couche continue en plots rectangulaires, de longueur égale à la séparation entre les plots et de largeur égale à la taille des plots qui font partie de notre réseau (200 nm). Ensuite on a calculé le champ dipolaire créé au milieu et au bord (noté 1 sur la fig.4.7b) d'un plot de Co par 6 plots rectangulaires voisins (3 dans la direction $0X$ et 3 dans la direction $-0X$). Les plots ont été considérés dans un état monodomaine, avec l'aimantation orientée parallèle à l'axe $0X$.

Une description plus détaillée de l'approche mathématique utilisée pour calculer le champ d'interaction dipolaire se trouve dans l'annexe 1.

Les valeurs du champ dipolaire calculées en fonction de l'espacement entre les plots sont présentées sur la fig.4.7a.

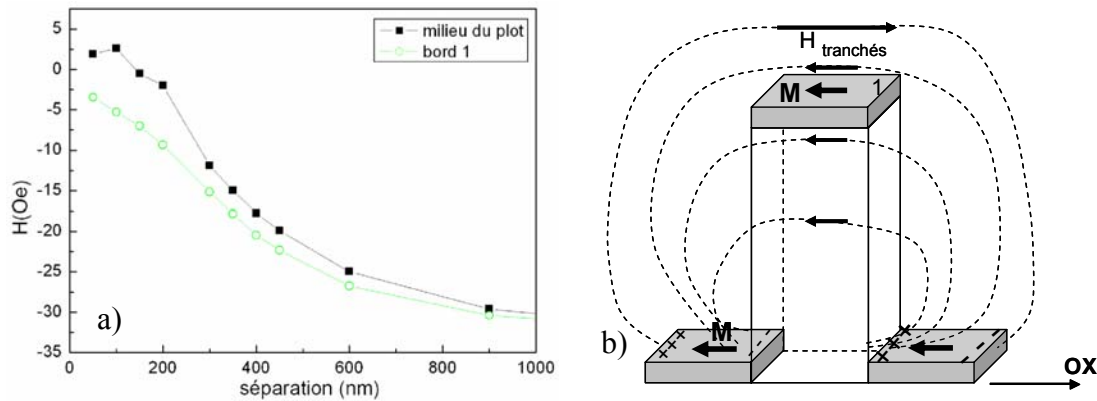


Fig.4.7 Le champ dipolaire crée par la couche déposée dans les tranchées aux milieux des plots voisins

Quand la séparation entre les plots qui forment le réseau étudié est de 50 nm et 100 nm, le champ d'interaction dipolaire crée au milieu d'un plot par les tranchées est très faible ~ 3 Oe et il s'oppose à l'orientation de l'aimantation à l'intérieur du plot.

En augmentant la séparation entre les plots, donc implicitement la largeur du plot de tranchés, la valeur absolue du champ augmente progressivement, en atteignant une valeur de -15 Oe pour une séparation de 350 nm. Cette fois le champ est parallèle à l'aimantation, donc renforce la saturation de l'aimantation

Afin de déterminer si l'influence des tranchées est importante, on va comparer la valeur du champ crée par les tranchées avec la valeur du champ dipolaire crée par un plot carré de Co dans le milieu d'un plot carré voisin. L'interaction dipolaire entre deux plots voisins de Co diminue avec l'espacement entre les plots. Pour un espacement de 50 nm le champ dipolaire est de 162 Oe. Ainsi, dans ce cas l'influence des tranchées est négligeable. Quand la séparation augmente jusqu'à 350 nm le champ dipolaire crée par un plot au milieu du plot voisin est de 14 Oe qui est comparable avec le champ crée par la couche de tranchée.

Quand on augmente progressivement le nombre de plots voisins on observe que le champ d'interaction dipolaire crée au milieu du plot central augmente tout d'abord avec le nombre de voisins et ensuite il sature (fig.4.8a). Dans le cas de ce calcul une séparation de 100 nm a été considérée entre les plots. Ce comportement est normal parce que l'interaction

dipolaire entre les plots qui sont très éloignés du plot central et le plot central devient négligeable.

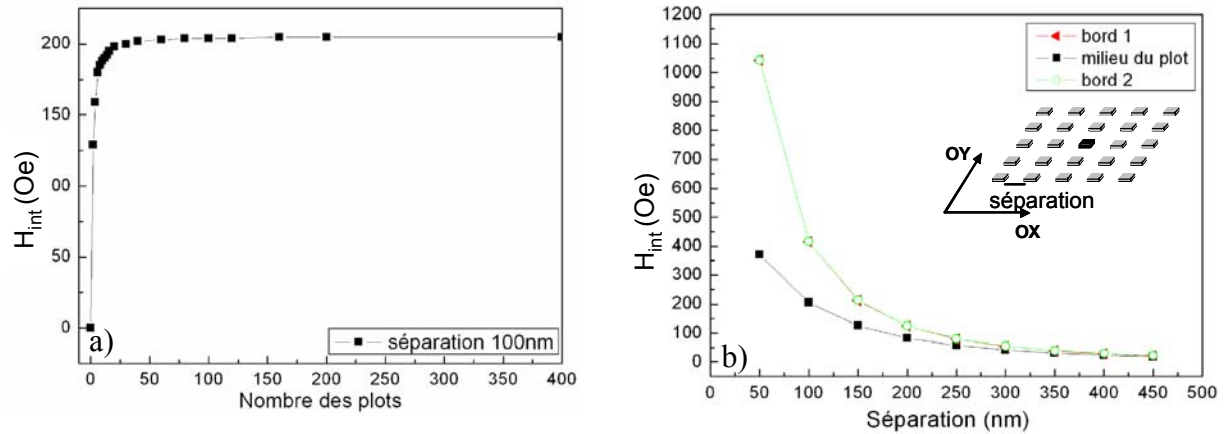


Fig. 4.8 Dépendance du champ d'interaction dipolaire : a) de nombre des plots voisins et b) de la séparation entre les plots pour un nombre des plots voisins de 2001 dans chaque direction (O_x et O_y)

Le champ d'interaction dipolaire créé par un réseau de 2001 x 2001 plots sur un plot qui se trouve au milieu du réseau en fonction de la séparation entre les plots a été calculé ensuite. Cette dépendance est représentée sur la fig.4.8b. Ce champ dipolaire diminue avec l'augmentation de l'espacement. Les valeurs du champ sont beaucoup plus importantes par rapport aux valeurs du champ créée par les tranchées et d'un seul voisin.

4.6. L'état fondamental et l'état à la rémanence

D'après le diagramme de phase de la fig.4.1, l'état fondamental de nos plots, avec $a=200$ nm et $t=20$ nm est l'état de vortex. A noter que le diagramme de la fig.4.1 est calculé pour FeNi avec $M_s = 860$ emu/cm³, tandis que dans notre cas il s'agit de Co avec $M_s=1400$ emu/cm³. Mais une augmentation de la valeur de M_s , pousse les lignes de limite entre l'état vortex et les états SD vers des valeurs plus petites de l'épaisseur et de la largeur. Finalement, nous avons calculé avec nos codes¹ les configurations pour l'état vortex et « leaf » pour des plots de Co carrés. Ces calculs montrent que l'énergie de l'état vortex est inférieure à celle de l'état « leaf ».

¹ Code GL-FFT [Toussaint_02]

4.6.1 Le contraste magnétique en faible champ

Expérimentalement nous avons étudié la configuration dans les plots de Co par MFM. Pour cela, les plots sont d'abord saturés dans un champ fort ($H=400$ Oe), puis le champ est diminué à une faible valeur.

On retrouve principalement trois types de contraste :

- 1) un contraste noir/ blanc parallèle à un bord du plot, qui est le contraste spécifique d'un état monodomaine avec l'aimantation parallèle au bord du plot,
- 2) de contraste noir/ blanc suivant la diagonale du plot
- 3) il y a d'autres plots qui ne présentent plus de contraste magnétique.

Ces trois types de contraste magnétique sont indiqués sur la fig.4.9a, qui est une image MFM enregistrée dans un champ de 80 Oe.

Afin de mieux interpréter ces derniers deux types des contrastes, des simulations micromagnétiques du contraste magnétique associé à un plot en état vortex et en état « leaf » ont été réalisées.

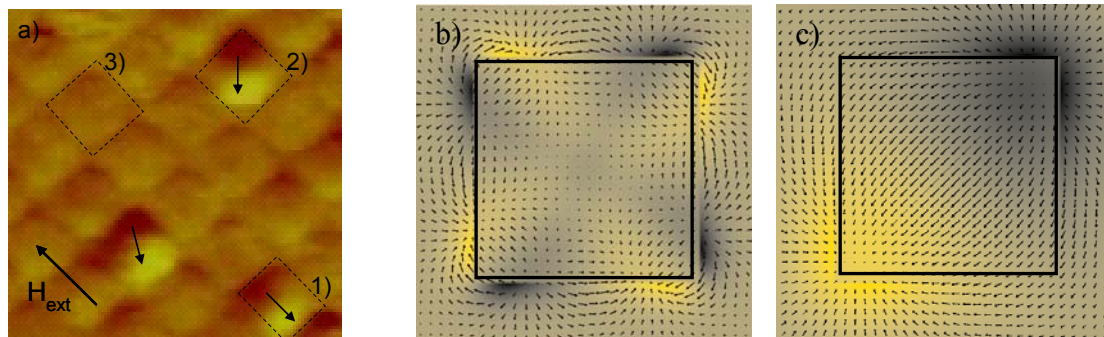


Fig.4.9 a)Image MFM réalisée sous un champ de 80 Oe pour des plots de 200 nm x 200 nm et contraste magnétique simulé pour un plot de taille latérale de 200 nm et épaisseur de 20 nm, plot étant ; b) dans un état vortex ; c) dans un état « leaf »

Sur les images simulées (fig.4.9b et 4.9c), les fléchés représentent la composante planaire de l'aimantation. Le contraste noir et blanc a la même signification, comme sur les images MFM: une accumulation des charges négatives respectivement positives. Autour des plots sont montrées les lignes du champ magnétostatique.

Comme on peut le voir sur l'image 4.9b aucun contraste magnétique au centre du plot n'est attendu dans le cas d'un vortex, seulement des très faibles contrastes suivant les diagonales du plot.

L'état « leaf » conduit à un contraste noir- blanc le long de la diagonale du plot (fig. 4.9c). Ce contraste simulé correspond bien au contraste observé en MFM donc on peut dire que les plots qui présentent un contraste noir / blanc suivant la diagonale sont dans un état « leaf » et les plots qui ne présentent aucun contraste magnétique sont en état vortex.

Lors des études MFM, l'orientation particulière du champ de fuite de la pointe MFM (perpendiculaire au plan de l'échantillon) facilite le basculement du plot vers l'état vortex.

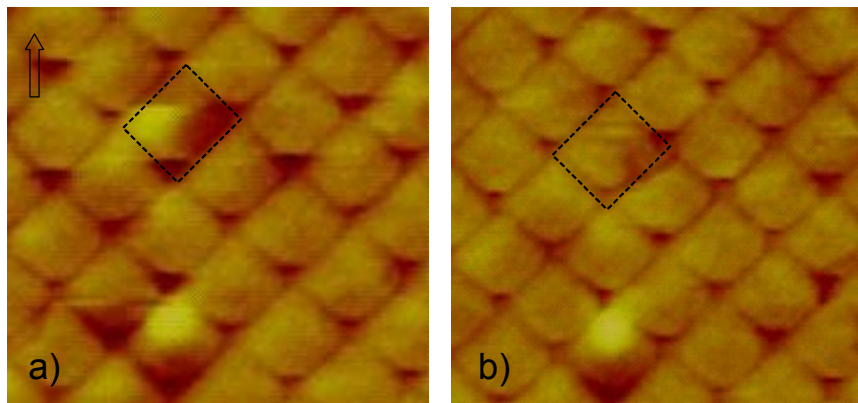


Fig.4.10 L'influence du champ magnétique de fuite de la pointe sur la configuration du plot : a) 1^{er} scanne, b) 2^{ème} scanne. La direction du scanne est montrée sur la figure par une flèche

Cette influence est bien visible pour des hauteurs de survol de la pointe de 100 nm par un changement discontinu dans le signal MFM, lorsque la pointe passe d'une ligne de balayage à une autre (fig. 4.10a). Un deuxième balayage dans la même région confirme la transition du plot de l'état monodomaine vers l'état vortex (fig. 4.10b). Ceci montre qu'à la rémanence ou pour un faible champ l'état « leaf » ou « flower » est un état métastable. Une faible perturbation comme le champ de fuite de la pointe MFM induit une transition vers l'état énergétiquement favorable qui est l'état vortex (fermeture du flux).

Une hauteur de vol plus importante peut diminuer l'influence du champ de fuite créé par la pointe mais il diminue aussi le contraste magnétique associé aux plots.

4.6.2 Contraste magnétique dû à la couche de Co des tranchées

Une caractéristique du réseau avec un espacement entre les plots de $S=150$ nm qui a été mise en évidence par mesures MFM est la présence d'un contraste magnétique qui est positionné entre les plots (fig. 4.11).

Les réseaux ont été saturés dans un champ de 1400 Oe, ensuite le champ a été réduit à zéro et augmenté dans le sens opposé en enregistrant des images MFM.

Nous avons attribué ce contraste qui apparaît entre les plots à la couche continue qui se trouve aux tranchés, couche qui a des dimensions plus grandes en augmentant la séparation entre les plots et qui sera plus visible pour la pointe magnétique.

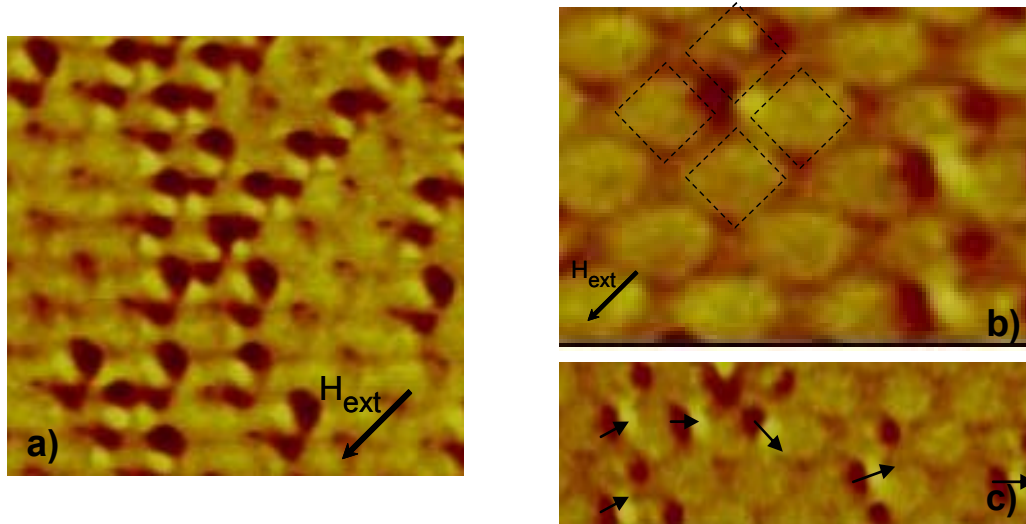


Fig.4.11 Images MFM prises sur le même réseau à deux valeurs de champs différentes : a) 700 Oe, b) 200 Oe et c) 0 Oe. Les images montrent la présence d'un contraste magnétique entre les plot

4.7. Magnétisme macroscopique des plots de Co : étude MOKE

Les réseaux avec des espacements entre 50 nm et 350 nm ont été caractérisés par magnétométrie Kerr magnéto-optique MOKE (voir chapitre 2). Le faisceau laser utilisé pour réaliser les mesures est de la même taille que le réseau (100 μm) ce qui a rendu difficile un positionnement exact sur le réseau. Il provient d'un laser HeNe avec une longueur d'onde λ de 600 nm.

4.7.1 Dépendance de la séparation S entre les plots

Afin de déterminer l'influence de l'espacement sur le comportement des réseaux, des courbes d'hystérésis ont été mesurées par effet Kerr magnéto-optique, pour différentes séparations. Ces courbes sont montrées sur la fig.4.12. Comme on peut voir, en diminuant la séparation S, la forme de la courbe change. Un palier apparaît à une séparation de 250 nm et il devient très visible à une séparation de 100 et 50 nm.

Il existe plusieurs possibilités d'interprétations de ces courbes. Dans le cas que le signal est attribué entièrement aux plots carrés, la première variation brusque de l'aimantation peut s'interpréter par la nucléation d'un vortex et le deuxième par l'annihilation d'un vortex. L'augmentation du champ d'annihilation en diminuant la séparation n'est d'ailleurs pas cohérente avec cette interprétation. En présence d'un champ appliqué un vortex déplacé fait apparaître des champs dipolaires qui facilitent l'annihilation du vortex du plot voisin. Ainsi, la diminution de la séparation et avec cela l'augmentation du champ interaction dipolaire, diminue le champ d'annihilation.

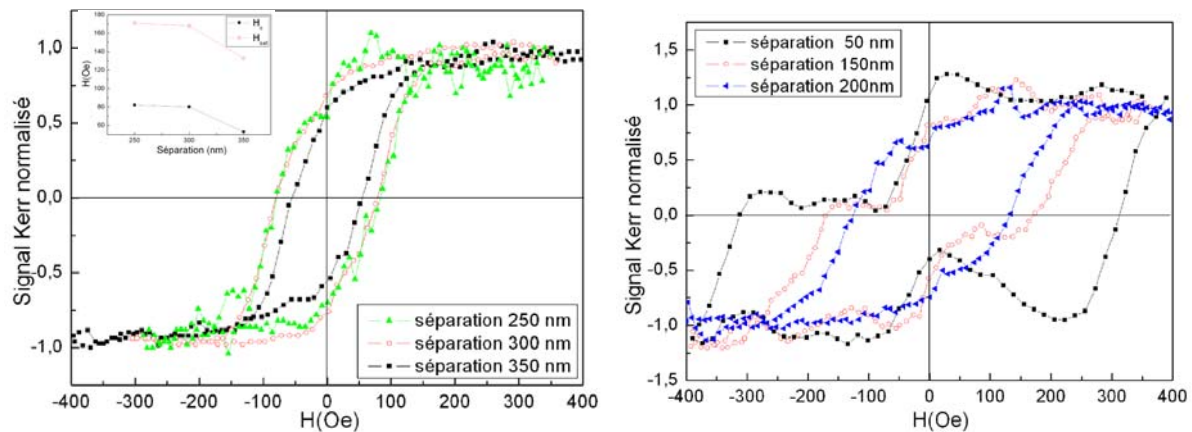


Fig.4.12 Courbes d'hystérésis pour des réseaux de plots de taille de 200 nm et d'épaisseur de 20 nm quand la séparation entre les plots a été variée entre 50 nm et 350 nm. Le champ magnétique a été appliqué parallèle à l'axe du réseau.

En conséquence, nous considérons que le palier n'est pas dû à la nucléation d'un état vortex, mais correspond à la superposition d'une courbe carrée provenant des tranchées et d'une courbe carrée provenant des sommets des plots. Comme les tranchées se renversent plus facilement que les plots, la première variation brusque de l'aimantation à plus faible champ est attribuée aux tranchées et le deuxième saut est attribué aux plots.

Ainsi, les plots semblent se renverser par une rotation de l'aimantation, sans nucléation d'un vortex. Il est rappelé que pendant le renversement, le système ne passe pas nécessairement par son état fondamental. Ceci semble en désaccord avec les mesures MFM (fig.4.9a). Mais les mesures MFM ont été effectuées en présence de la pointe MFM, qui rayonne un champ dipolaire et qui facilite la transition en un état vortex, comme cela est montré sur la figure 4.10.

Notre conclusion est soutenue par des simulations micromagnétiques réalisées pour un plot isolé. Ces simulations micromagnétiques ont été réalisées par L. Prejbeanu et J.C Toussaint avec le code GL_FFT [Kevorkian_98]. Le processus de retournement de

l'aimantation dans un plot isolé a été étudié en appliquant un champ magnétique externe parallèle à un bord du plot (fig. 4.13).

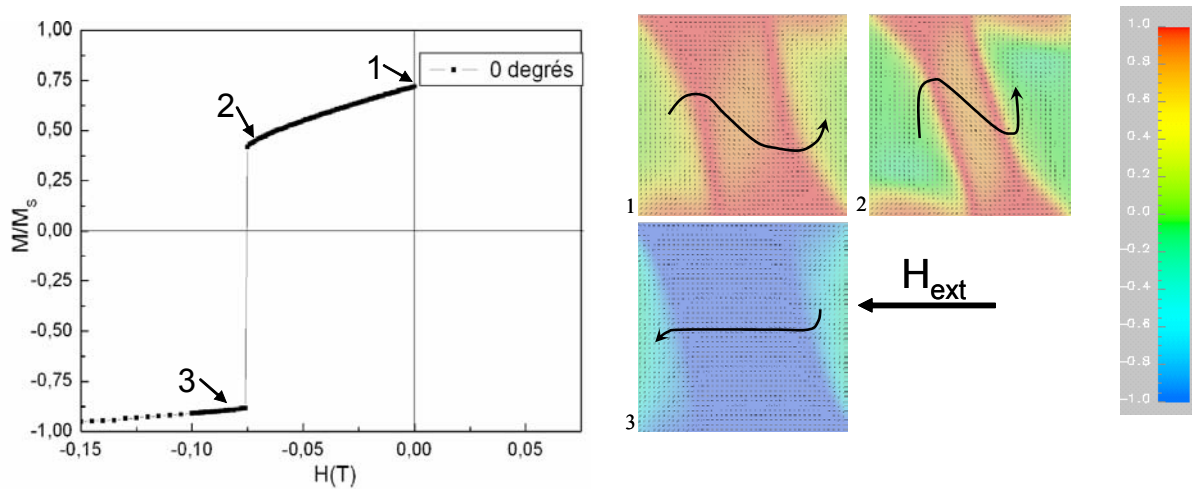


Fig. 4.13 Simulation micromagnétique d'un cycle d'aimantation d'un plot isolé lorsque le champ est parallèle à un bord du plot

Ces simulations micromagnétiques montrent que même si l'état fondamental est un état vortex, le retournement de l'aimantation n'a pas lieu par la formation d'un vortex. En revenant de la saturation dans un champ positif, la distribution de l'aimantation à l'intérieur du plot commence à être perturbée et tourne faiblement par rapport à la direction du champ. Comme on peut voir sur les images 1 et 2 qui correspondent aux positions 1 et 2 sur la courbe d'hystérésis l'aimantation semble former un état « S » de plus en plus prononcé avant de se retourner suivant la direction du champ appliqué.

Sur la fig.4.14 la variation des champs coercitifs en fonction de la séparation est montrée. Tandis que pour les tranchées il n'y a pas une grande variation, le champ de retournement pour les plots augmente en diminuant la séparation.

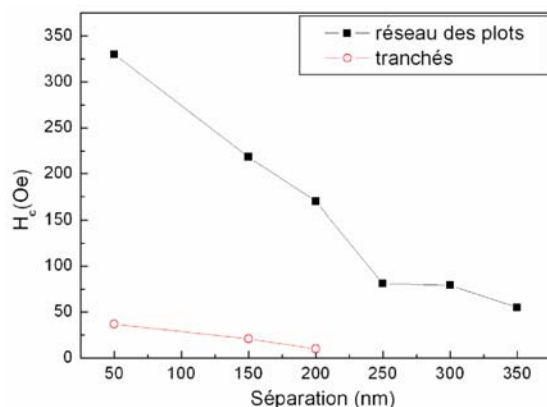


Fig.4.14 La dépendance du champ coercitif de la séparation entre les plots

Cette augmentation est due au fait que les interactions dipolaires augmentent avec la diminution de la séparation entre les plots. Les interactions dipolaires stabilisent l'état monodomaine donc un champ opposé plus fort est nécessaire pour renverser les plots. A noter également que l'augmentation du champ coercitif par 300 Oe (pour $S = 50$ nm) est comparable au champ d'interaction calculé et montré sur la fig. 4.8b pour le centre du plot (400 Oe).

En revenant sur la figure 4.12 avec les courbes $M(H)$ en fonction de la séparation S , on remarque que la hauteur de la première variation augmente en diminuant la séparation. En attribuant ce première variation au renversement des tranchées, on s'attendait plutôt à une diminution du saut, car en diminuant la séparation S , le rapport de la surface des tranchées diminue par rapport à la surface des plots. Pour l'instant nous n'avons pas une bonne explication pour ce comportement. Mais il serait possible, que pour les grandes séparations, qui correspondent environ à la moitié de la longueur d'ondes du laser, il existe des effets optiques d'interférences, qui sont destructives et qui masque le signal des tranchés.

4.7.2 Dépendance angulaire

Pour les réseaux avec un espacement $S = 150$ et 350 nm des courbes d'hystérésis ont été mesurées en variant l'angle du champ externe par rapport à l'axe du réseau. L'augmentation de l'angle conduit à une variation de la forme du cycle et une importante augmentation du champ coercitif (fig. 4.15).

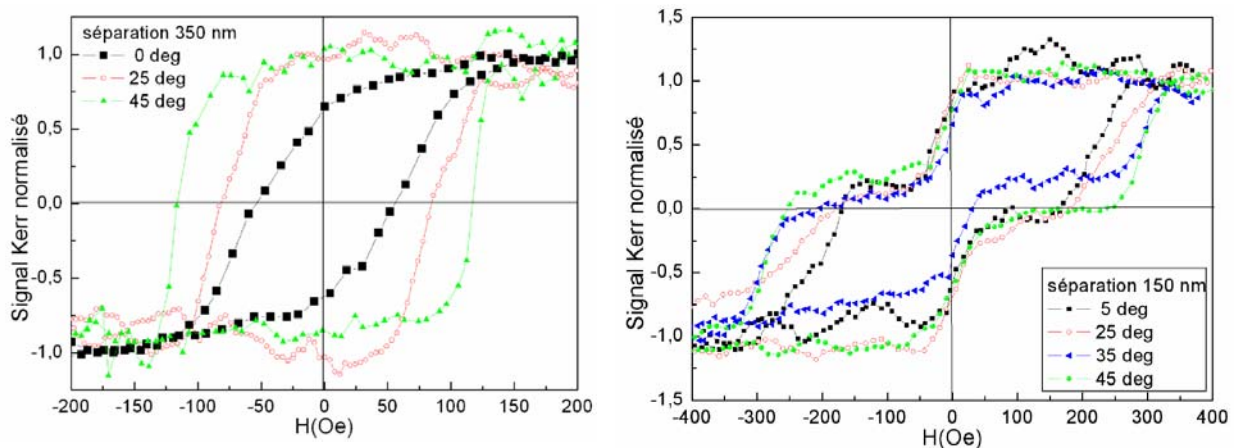


Fig.4.15 Courbes d'hystérésis en fonction de l'angle d'application du champ externe pour deux réseaux de séparation 350 nm et 150 nm.

Pour $S = 350$ nm la forme varie d'un cycle très arrondi quand H est parallèle à l'axe du réseau (0°) vers un cycle carré quand H fait 45° avec l'axe du réseau. Pour $S=150$ nm la transition est plus abrupte pour 45° . Ce comportement peut s'interpréter comme un passage d'un axe difficile à 0° vers un axe facile à 45° .

Une variation de la forme des courbes d'hystérésis associée avec une augmentation du champ H_c ont été également mises en évidence pour des plots carrés par Cowburn et al. [Cowburn_98b] a été expliqué par la présence d'une anisotropie configurationnelle (voir chapitre 1). En effet, l'état « flower » et l'état « leaf » sont deux états quasi- monodomaine caractérisés par des énergies différentes. L'état plus favorable est donné par la taille latérale et l'épaisseur du plot. Cowburn et al. [Cowburn_98c] ont montré que la limite entre ces deux états est donnée par le rapport $\frac{a}{t} \sim 3$. Pour $\frac{a}{t} > 3$, l'état « leaf » a une énergie plus basse et pour $\frac{a}{t} < 3$, l'état « flower » a une énergie plus basse. Cette relation est correcte, même si l'état fondamental est l'état vortex.

Pour nos plots de Co avec $a=200$ nm et $t=20$ nm, le rapport $\frac{a}{t} = 10$, ainsi l'état « leaf » sera préférable, ce qui correspond à une orientation moyenne de l'aimantation vers la diagonale du plot. En conséquence la direction parallèle à 45° peut être considéré comme un axe facile.

Le champ d'anisotropie configurationnelle correspondant, peut être calculé avec la formule [Cowburn_98c] :

$$H_{conf} = \frac{8 * M_s^3 * a^2}{A} * (Q - P)$$

où a est la taille du plot et P et Q sont des fonctions qui dépendent seulement du rapport taille plot (a)/ épaisseur (t). Dans notre cas $Q-P \sim 10^{-3}$ [Cowburn_98c] (fig. 4.16).

Ces valeurs conduisent à un champ d'anisotropie configurationnelle de $H_{conf} = 6272$ Oe qui est une valeur très importante, ce qui explique la variation assez forte du champ coercitif avec l'angle. Il faut noter que pour des tailles importantes des plots cette formule est valable seulement du point de vue qualitatif.

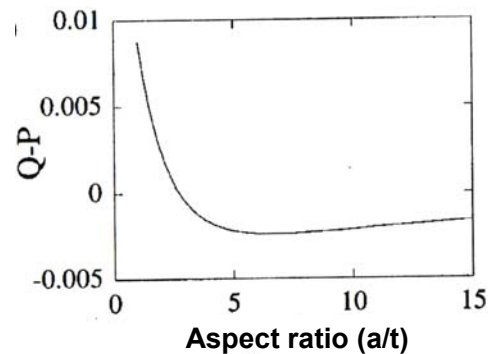


Fig.4.16 La dépendance de la fonction $Q-P$ du rapport taille du plot/ épaisseur [Cowburn_98c]

4.8 Magnétisme microscopique des plots de Co : études MFM

Jusqu'à présent les courbes d'hystérésis ont donné des informations sur le comportement magnétique de l'ensemble des plots qui forment un réseau. Afin d'approfondir cette étude et d'obtenir des informations sur le comportement d'un seul plot des études MFM ont été réalisées. Nous avons voulu mettre en évidence également l'influence des interactions dipolaires sur le renversement de l'aimantation des plots.

4.8.1 Renversement de l'aimantation dans des réseaux de plots espacés ($S=250\text{ nm}$)

Le protocole de mesure consiste dans la saturation du réseau dans un sens, puis le champ est diminué vers zéro et augmenté dans le sens opposé. Les images obtenues ainsi sont présentées sur la fig.4.17.

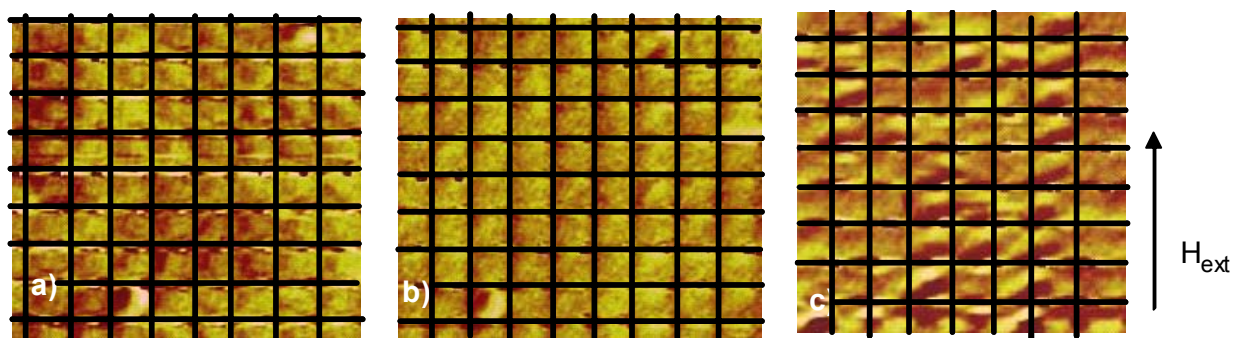


Fig.4.17 Images MFM d'un réseau des plots avec la séparation de 250 nm entre les plots sous un champ de : a) 50 Oe b) 200 et c) 400 Oe

Dans un champ de 50 Oe, les plots du réseau présentent deux comportements. Deux plots semblent d'être dans un état quasi- monodomaine (leaf), le contraste magnétique étant noir- blanc le long de la diagonale du plot. Les autres plots ne montrent pas de contraste magnétique ce qui suggère la présence d'un état de fermeture de flux (vortex). En augmentant le champ jusqu'à 200 Oe, les plots commencent à montrer des faibles contrastes noir- blanc ce qui signifie que le vortex commence à être expulsé. Quand le champ appliqué est de 400 Oe, 36% des plots sont dans un état monodomaine dans la direction du champ

Donc les mesures MFM semblent montrer que le renversement de l'aimantation a lieu par l'apparition d'un état vortex et le champ nécessaire à saturer les plots dépasse 400 Oe.

Le comportement des plots observé en MFM ne correspond pas au comportement suggéré par les courbes $M(H)$, qui indiquent un renversement sans formation d'un vortex.

Cette différence peut être causée par la pointe magnétique. Son champ de fuite peut induire des changements dans la configuration micromagnétique facilitant l'apparition d'un vortex.

4.8.2. Renversement de l'aimantation dans un réseau de plots serrés ($S=50$ nm)

En diminuant l'espacement entre les plots jusqu'à 50 nm, on attend un comportement différent des plots à cause de l'augmentation de l'intensité des interactions dipolaires comme nous avons montré dans le paragraphe 4.7.1.

Les études MFM ont été réalisées en appliquant un champ magnétique externe dans le plan de l'échantillon. Les plots ont été saturés à 400 Oe et ensuite le champ a été diminué jusqu'à 0 Oe en enregistrant des images MFM à différentes valeurs du champ.

Comme on peut le voir sur ces images MFM, dans un champ de 300 Oe tous les plots sont saturés dans la direction du champ (fig.4.18).

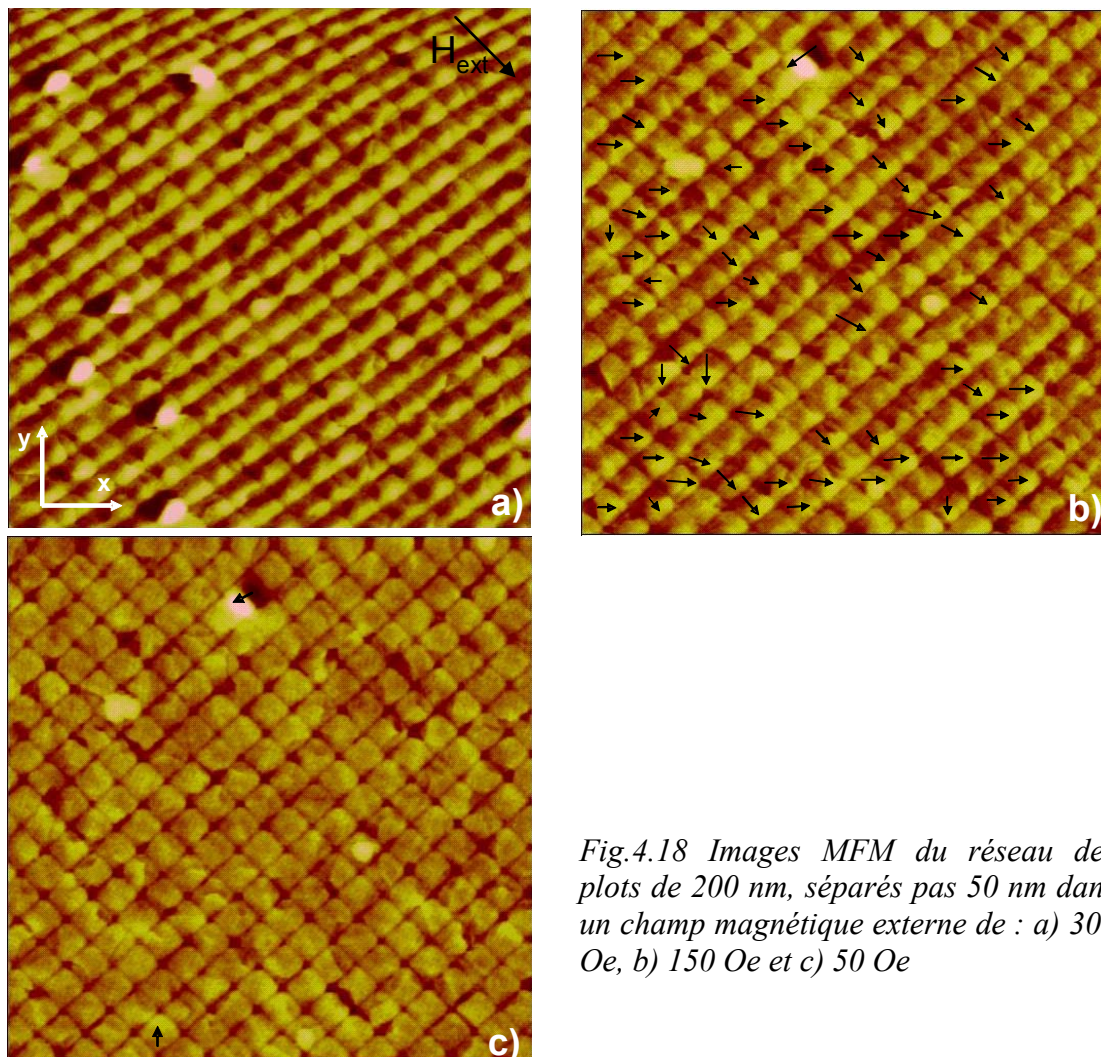


Fig.4.18 Images MFM du réseau des plots de 200 nm, séparés pas 50 nm dans un champ magnétique externe de : a) 300 Oe, b) 150 Oe et c) 50 Oe

Quand on diminue le champ appliqué, jusqu'à 150 Oe, il y a plusieurs comportements suivis par les plots. Certaines plots restent encore dans un état monodomaine suivant la direction du champ appliqué. Ils représentent 22% des plots du réseau analysé. Un pourcentage de 40% des plots vont basculer dans un état vortex, plots qui ne présentent plus de contraste magnétique sur l'image MFM.

Le reste de 38% des plots présentent en revanche un contraste noir blanc suivant la diagonale des plots soit suivant la direction x (35%) soit suivant la direction y (3%). Ce contraste est le contraste spécifique d'un état « leaf ». Comme indiqué dans le paragraphe 4.7.2 pour la taille des nos plots l'état « leaf » est énergétiquement favorable, ainsi la rotation de l'aimantation vers la diagonale du plots est en fait une rotation de l'aimantation d'une direction parallèle à l'axe difficile vers une direction parallèle à l'axe facile.

En diminuant encore le champ vers 50 Oe, la grande majorité des plots seront dans un état vortex.

Cette caractérisation MFM conduit à la conclusion qu'en diminuant le champ externe appliqué à partir de la saturation, les plots basculent dans un état vortex, le basculement étant précédé pour la grande majorité des plots par un passage par un état « leaf » (fig.4.19).

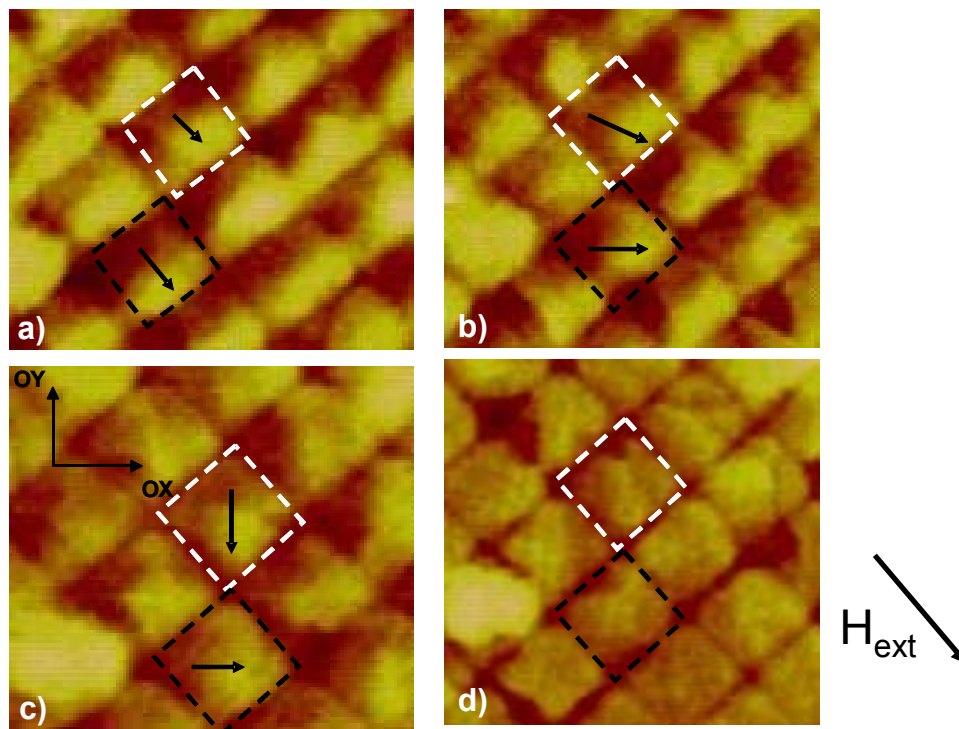


Fig.4.19 Réseau des plots de taille 200 nm, séparés par 50 nm sous un champ de: a) 300 Oe, b) 250 Oe, c) 140 Oe et d) 0 Oe

Pendant les mesures MFM réalisés sur ce réseau on a trouvé un nombre réduite de plots pour les quels le retournement de l'aimantation se réalise par une rotation de l'aimantation sans la formation d'un vortex (fig.4.20b), comme cela était attendu d'après les courbes $M(H)$.

La figure 4.20a montre un cycle obtenu en représentant en fonction du champ externe appliqué, l'angle que l'aimantation du plot fait avec la direction du champ.

Comme on peut voir sur l'image pour des valeurs importantes du champ magnétique externe, le plot adopte une configuration monodomaine avec l'aimantation suivant la direction du champ. En réduisant le champ externe, l'aimantation dans le plot commence de tourner légèrement. La rotation continue quand le champ est augmenté dans le sens opposé, l'aimatation du plot est de nouveau disposée suivant la direction du champ externe.

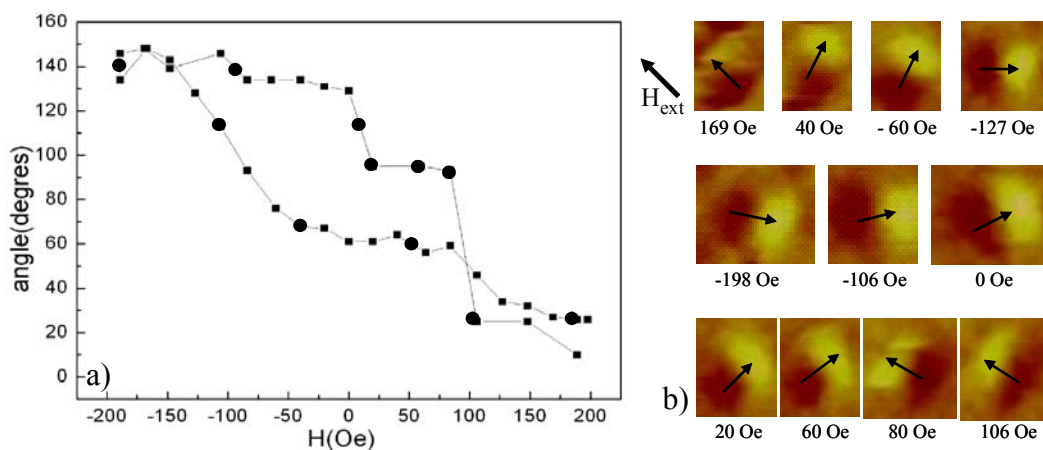


Fig.4.20 a) La dépendance de l'angle fait par l'aimantation avec le champ magnétique externe appliqué du champ magnétique appliqué ; b) Images MFM qui montrent le retournement de l'aimantation par rotation cohérente dans un plot

4.8.3. La variation du champ de nucléation et d'annihilation du vortex

a) Nucléation

Afin de mettre en évidence l'influence des interactions dipolaires sur le comportement magnétique des plots qui forment un vortex pendant le renversement, une analyse MFM comparative est nécessaire entre les réseaux pour lesquels l'espacement entre les plots est de 50 et 250 nm.

Les images MFM réalisées sur des réseaux de différents espacements montrent qu'en diminuant le champ à partir de la saturation, dans le même champ : par exemple 150 Oe sur la fig.4.21, le nombre des vortex nucléés est beaucoup plus grand dans le réseau plus espacé

($S=250$ nm) 99% du nombre total des plots, par rapport au réseau serré ($S=50$ nm), 65%. L'explication consiste dans le fait que les interactions dipolaires sont plus fortes dans les réseaux serrés, interactions qui stabilisent l'état monodomaine, en conduisant à des champs des nucléations plus petites.

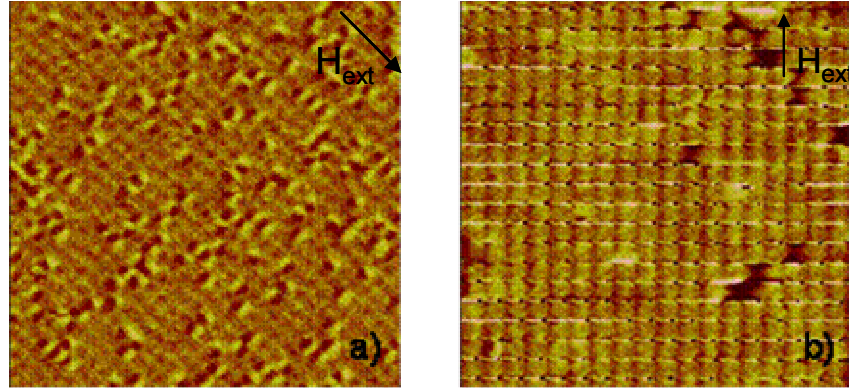


Fig.4.21 Distribution des vortex dans le réseau: a) d'espacement 50 nm, b) d'espacement 250 nm sous un champ de 150 Oe. Les surfaces visualisées sont $8\text{ }\mu\text{m} \times 8\text{ }\mu\text{m}$

b) Annihilation

Afin de déterminer le comportement du champ d'annihilation en fonction de l'espacement entre les plots, les réseaux d'espacement 50 nm et 300 nm ont été saturés suivant l'axe du réseau. Ensuite une caractérisation MFM a été réalisée sous un champ appliqué dans le sens opposé. A partir des images MFM le nombre des plots dans un état monodomaine a été déterminé pour chaque valeur du champ et un quart d'hystérésis a été ainsi obtenu. Les résultats sont représentés sur la fig.4.22.

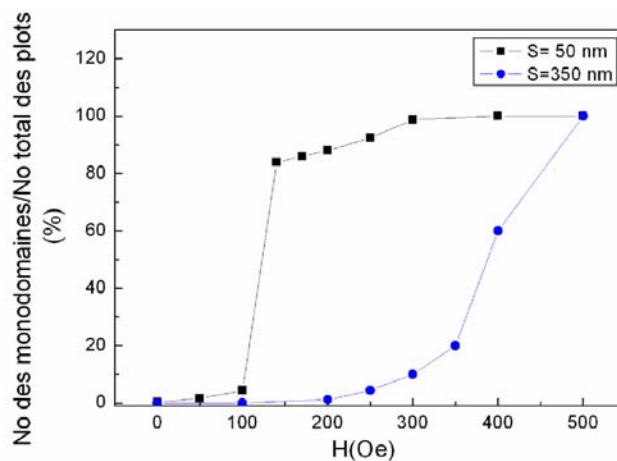


Fig. 4.22 Le pourcentage de plots qui se trouvent dans un état monodomaine en fonction du champ externe appliqué pour des réseaux avec différentes séparations entre les plots

Le réseau le plus serré $S = 50$ nm présente une augmentation brusque du nombre des plots en état monodomaine quand le champ externe appliqué est autour de 100 Oe. Ce champ auquel les vortex sont expulsés du plot est en fait le champ d'annihilation. Quand la séparation entre les plots augmente jusqu'à $S = 300$ nm l'expulsion des vortex a lieu plus progressivement et à un champ de 400 Oe la plus part des plots sont en état monodomaine.

On observe que l'augmentation de la séparation entre les plots, conduit à une augmentation du champ d'annihilation du vortex. Ce comportement est compréhensible si on prend en considération les interactions dipolaires entre les plots du réseau. L'orientation du champ d'interaction dipolaire est donnée par l'orientation des moments magnétiques des plots. Lorsque le champ magnétique est augmenté de zéro vers la valeur de la saturation, le champ dipolaire se rajoute au champ externe et l'état vortex est préservé jusqu'au moment où la somme entre le champ externe et le champ d'interaction dipolaire égale la valeur du champ d'annihilation. Ainsi, des interactions dipolaires plus intenses font que l'annihilation des vortex est déplacée vers des valeurs plus petites du champ externe.

4.8.4. Corrélation de l'aimantation : aimantation en zig- zag

Une conséquence directe de l'effet des interactions dipolaires entre les plots qui a été mise en évidence pour les réseaux avec un espacement de 50 nm sera présenté dans ce paragraphe.

Juste avant la nucléation de vortex, l'aimantation des états monodomaines commence à s'incliner par rapport à la direction du champ appliqué, champ qui a été appliqué suivant la direction du réseau. Cette inclinaison est corrélée d'un plot à l'autre et un contraste magnétique de type zig-zag est observé (fig. 4.23).

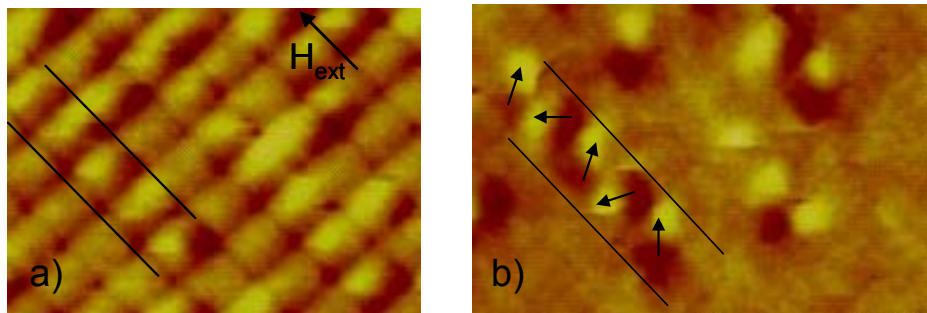


Fig. 4.23 Contraste magnétique en zig- zag dans une chaîne des plots. Le champ de mesure a été pour la fig. a) $H = 169$ Oe et b) 50 Oe

Dans le cas d'un plot isolé, en revenant de la saturation, la distribution de l'aimantation à l'intérieur du plot commence à être perturbée et tourne faiblement par rapport à la direction du champ. Si ce plot est amené au voisinage d'autres plots avec lesquels il va établir une interaction magnétostatique, la perturbation de sa distribution d'aimantation va être corrélée avec les inclinaisons de l'aimantation qui surviennent dans les plots voisins, afin d'assurer la fermeture du flux. Ainsi, le développement d'une structure en zig-zag a son origine dans l'attraction des charges magnétique de signe opposé dans les plots adjacents.

Ce comportement n'a pas été mis en évidence pour des réseaux avec un espacement de 300 nm où les interactions dipolaires sont plus faibles.

4.9. Conclusion

Dans le cadre de ce chapitre, nous avons analysé le comportement magnétique des plots carrés arrangés dans des réseaux carrés. La séparation entre les plots a été variée entre 50 nm et 350 nm. Pour les plots que nous avons analysé de taille 200 nm et d'épaisseur de 20 nm on attendait comme état fondamental l'état vortex.

Les mesures MFM ont mis en évidence plusieurs types de contraste magnétique et les calculs micromagnétiques nous ont permis d'attribuer ces contrastes à un état: vortex, leaf et monodomaine. Nous avons également mis en évidence l'influence du champ de fuite de la pointe sur la structure magnétique d'un plot, ce champ facilitant le basculement d'un plot monodomaine vers un état vortex.

Les études MOKE ont montré une dépendance de la forme des courbes d'hystérésis et du champ coercitif de la séparation entre les plots. En diminuant la séparation entre les plots, à partir d'une séparation de 250 nm un palier apparaît et il est très important pour des séparations de 100 nm et 50 nm. Sa présence a été attribuée à la superposition d'une courbe carrée provenant des tranchées et d'une courbe carrée provenant des sommets des plots. Comme les tranchées se renversent plus facilement que les plots, la première variation brusque de l'aimantation qui a lieu à plus faible champ est attribuée aux tranchées et la deuxième variation est attribuée aux plots. Ainsi, les plots semblent se renverser par une rotation de l'aimantation, sans nucléation d'un vortex.

Une variation des champs coercitifs en fonction de la séparation a été observée. Tandis que les tranchées ne montrent pas une grande variation, le champ de retournement pour les plots augmente en diminuant la séparation. Cette augmentation est due au fait que les interactions dipolaires augmentent avec la diminution de la séparation entre les plots.

Les études MOKE ont mis en évidence également une dépendance angulaire du champ coercitif pour les deux réseaux analysés ($S=350\text{ nm}$ et $S=150\text{ nm}$). La valeur du champ coercitif augmente avec l'augmentation de l'angle fait par le champ avec l'axe du réseau. Ce comportement a été expliqué par la présence d'une anisotropie configurationnelle assez importante dans les plots carrés.

Des études MFM ont été réalisées sur deux réseaux avec des séparations entre les plots $S=250\text{ nm}$ et $S=50\text{ nm}$. Contrairement aux études MOKE, ces études ont montré que le renversement de l'aimantation dans les plots a lieu par le passage par un état vortex. Ce comportement a été expliqué par l'influence du champ de fuite de la pointe magnétique utilisée pendant la mesure. En plus pour les réseaux serrés ($S=50\text{ nm}$) la nucléation du vortex est précédé par la rotation de l'aimantation vers la diagonale du plot.

L'influence des interactions dipolaires a été également mise en évidence. Cette influence consiste dans la variation du champ de nucléation et d'annihilation du vortex avec la séparation entre les plots. Une autre conséquence directe de l'effet des interactions dipolaires entre les plots, quand la séparation est de 50 nm , a été la présence d'un contraste magnétique en zig-zag pour des plots voisins.

Il faut noter que pour ce type de plots l'influence des interactions dipolaires ne s'a pas manifesté par la nucléation des vortex par un mécanisme d'avalanche suivant la direction d'applicabilité du champ externe comme a été mis en évidence pour des plots circulaires [Natali_02]. Ceci peut s'expliquer par le fait que contrairement aux plots circulaires où le renversement se passe par l'état vortex pour tous les plots, pour les plots carrés l'état vortex est induit par le champ magnétique rayonné par la pointe MFM donc si un plot carré va former un vortex le plot voisin ne va pas nécessairement basculer vers un état vortex.

Références bibliographiques du chapitre :

- [Buda_02] L. Buda, L. Prejbeanu, U. Ebels, K. Ounadjela, Comp. Mat. Science, **24**, 181-185, (2002)

Chapitre 4 : Magnétisme de réseaux des plots carrés

- [Cowburn_98a] R. Cowburn, M.E. Welland, Appl. Phys. Lett., **72**, no 16, 2041 (1998)
- [Cowburn_98b] R. Cowburn, A. O. Adeyeye, M.E. Welland, Phys. Rev. Lett., **81**, 5414 (1998)
- [Cowburn_98c] R. Cowburn, M.E. Welland, Phys. Rev. B, **58**, 9217, (1998)
- [Dunin-Borkowski_99] R.E. Dunin- Borkowski, M.R. McCartney, M.R. Scheinfein, Appl. Phys. Lett , **75**, no17, 2641, (1999)
- [Fernandez_00] A.Fernandez, C. J. Cerjan, J. Appl. Phys., **87**, 1395 (2000)
- [Gadetsky_94] S. Gadetsky, T. Susuki, J.K. Erwin, M. Mansuripur, IEEE Trans. Magn., **30**, 4404 (1994)
- [Gadetsky_96] S. Gadetsky, J.K. Erwin, M. Mansuripur, T. Susuki, J. Appl. Phys., **79**, 5687, (1996)
- [Gusliencko_02] K. Gusliencko, V. Novosad, Y. Otani, H. Shima, K. Foukamichi, Phys. Rev . B, **65**, 024414 (2002)
- [Ichihara_90] K. Ichihara, J. Appl. Phys., **67**, 6552 (1990)
- [Landis_01] S. Landis, « réseaux des plots magnétiques submicroniques réalisés à partir de substrats pré- gravé », Université J. Fourier, Grenoble (2001)
- [Natali_02] M. Natali, L. Prejbeanu, A. Lebib, U. Ebels, Phys. Rev. Lett. **88**, 157203, (2002)
- [Novosad_03] V. Novosad, M. Grimsditch, J. Darrouzet, J. Pearson, S.D. Bader, V. Metlushko, K. Gusliencko, Y. Otani, H. Shima, K. Foukamichi, Appl. Phys. Lett., **82**, no 21, 3716 (2003)
- [Schabes_87] R.P. Schabes and A. Aharoni, IEEE Trans. Magn. **23**, 3882 (1987)
- [Schabes_88] R.P. Schabes and H.N. Bertram, J. Appl. Phys., **64**, 1347 (1988)
- [Shi_00] J. Shi, S. Tehrani, M.R. Scheinfein, Appl. Phys. Lett., **76**, no18, 2588 (2000)
- [Toussaint_02] J.C. Toussaint, A. Marty, Comp. Mater.Sci, **24**, (1-2), 175, (2002)

Chapitre 5

L'élaboration de nanoparticules par irradiation électronique

5.1. Introduction.....	114
5.2. Différents types de croissance d'un métal sur un oxyde.....	116
5.3. Préparation et caractérisation magnétique des échantillons.....	117
5.3.1 Préparation et caractérisation magnétique des couches Co/SiO ₂	117
5.3.1.1 Optimisation de la température de dépôt	118
5.3.1.2 L'influence de l'épaisseur de la couche et de la température de recuit sur ses propriétés magnétiques.....	125
5.3.2 Préparation et caractérisation magnétique des couches Co/SiN.....	129
5.4. Irradiation par un faisceau d'électrons provenant d'un TEM.....	134
5.4.1 L'effet de l'irradiation de couches discontinues de Co	134
5.4.2 L'effet de l'irradiation de couches continues de Co.....	139
5.5. Conclusion.....	142
Références bibliographiques du chapitre.....	144

5.1 Introduction

L'application des petites particules monodomaines dans l'enregistrement magnétique a stimulé le développement de différentes techniques de préparation qui visent à améliorer leurs propriétés en termes de stabilité thermique, de densité d'intégration, de champ rayonné et aussi à faciliter le processus de fabrication (vitesse et coût du processus).

Dans les dernières années plusieurs techniques de préparation de petites particules ont été développées. Une place importante dans le cadre de ces techniques est occupée par la lithographie, qui est un nom générique pour plusieurs techniques.

Dans la catégorie des techniques de lithographie fait partie *la lithographie par faisceau d'électrons*, technique assez couramment utilisée en laboratoire pour sa souplesse. Cette technique utilise un faisceau d'électrons pour exposer une résine. L'exposition est réalisée en utilisant un faisceau d'électrons provenant d'un microscope à balayage ou à transmission [Hu_95], [Streblechenko_98]. Le faisceau est piloté par un ordinateur et ainsi on peut écrire des particules de différentes tailles et formes. C'est le principal avantage de cette technique. L'insolation est cependant assez lente ce qui ne permet pas de couvrir des grandes surfaces. La plus petite taille de particules réalisées par cette méthode a été de 55 nm [Cowburn_99].

Dans le cadre de *la lithographie par rayons X* une radiation provenant d'un synchrotron est utilisée pour irradier l'échantillon qui est couvert d'une couche de résine sensible à la radiation X. Entre la source de radiation et l'échantillon est interposé un masque qui va définir le motif qu'on veut écrire sur l'échantillon. L'avantage est que le masque peut être utilisé plusieurs fois. Après l'irradiation la résine est développée et le motif magnétique est obtenu par gravure [Rousseaux_95], [Hillebrands_97], lift off [Hehn_96], [Bardou_96]. La résolution obtenue par cette méthode est de 88 nm [Miramond_97].

La nano- impression est une méthode de lithographie couramment utilisée. Elle est décrite plus en détail dans le deuxième chapitre de cette thèse. Des résolutions inférieures à 10 nm ont pu être atteintes [Chou_98].

Une modalité différente de préparation de particules consiste à préstructurer le substrat sous la forme des plots nanométriques puis de déposer le matériau magnétique. Le motif sur le substrat peut être réalisé par lithographie (X ray, électronique ou optique) puis par gravure. Cette méthode a été utilisée pour préparer les plots étudiés dans le quatrième chapitre de cette thèse. Ainsi des particules de taille jusqu'à 90 nm ont pu être obtenues [Baltz_04]. Un

problème qui peut apparaître pendant la caractérisation magnétique est le fait que le signal magnétique total peut avoir deux contributions: une qui vient du matériau magnétique couvrant le sommet des plots et l'autre du matériau magnétique situé au fond des tranchées.

Une méthode assez facile à mettre en oeuvre et peu coûteuse est *la lithographie par nano-sphères*. Dans cette technique, des nanosphères de latex calibrés en taille sont dispersées à la surface d'un solvant organique. Grâce à la très faible dispersion en taille des particules de latex, les effets de tension de surface du solvant conduisent à une auto-organisation en monocouches de structure hexagonale des sphères à la surface du solvant. En plongeant un substrat dans le solvant, on peut alors recueillir délicatement cette monocouche de nanosphères sur le substrat. Ce réseau auto-organisé de nanosphères va servir de masque nanométrique pour réaliser des réseaux des particules. Pour cela, le matériau est déposé sur le substrat à travers la couche de nanosphères, nanosphères qui sont ensuite dissoutes par un solvant approprié. Des tailles de 220 nm ont pu être obtenue ainsi [Rybczynski_03][Glaczynska_03]. La taille des particules est limitée par la taille de nanosphères utilisées.

Une autre technique de lithographie est la *lithographie en champ proche* qui utilise des pointes AFM couvertes par un matériau magnétique pour réaliser des réseaux de nanostructures magnétiques. Un pulse de tension négatif est appliqué pendant quelques secondes entre la pointe et la surface de l'échantillon. Ce pulse va provoquer par émission du champ un transfert local du matériau magnétique de la pointe vers l'échantillon créant une nanostructure magnétique. La taille des éléments dépend du substrat, du type du matériau de la pointe, de la tension appliqué et de la distance entre la pointe et le substrat. La taille la plus petite réalisée est de 10 nm [Bessho_96] [Schaub_92]. Cette technique est peu reproductible et ne permet d'obtenir que des plots circulaires.

Dans ce chapitre nous allons décrire une nouvelle méthode qui permet la fabrication des nanoparticules. L'idée de cette technique de préparation est née d'observations TEM de multicouches de $\text{SiO}_2/\text{Co}(20\text{\AA})/\text{SiO}_2$. L'irradiation et le chauffage in situ de ces multicouches avec le faisceau des électrons du TEM a conduit à la dissociation de la tricouche de Co pendant l'observation formant des particules avec un diamètre de 20 et 30 Å couvertes par l'oxyde de silicium [Dieny_97]. L'avantage de cette méthode sera la taille réduite des particules, la possibilité de contrôler la position des nos particules avec le faisceau d'électrons et aussi sa facilité.

Pendant notre étude nous avons repris cette idée et nous l'avons appliqué à une couche continue de Co déposée sur SiN et SiO₂. La couche de Co est recouverte par une couche fine d'Al (20Å) qui s'oxyde naturellement et ainsi le Co se retrouve entre deux couches d'oxyde.

Le chapitre est structuré en plusieurs parties. Nous allons commencer par la description des différents types de croissance d'un métal sur un oxyde et par l'optimisation de la croissance d'une couche de Co sur SiO₂ et SiN et recouvert par Al. Ensuite les propriétés magnétiques de la couche de Co d'épaisseur qui varie entre 10 Å et 30 Å, sont analysées. Dans la seconde partie sont présentés les effets de l'irradiation sur une couche discontinue de SiO₂/Co/SiO₂ et sur une couche continue de SiO₂/Co / AlO avec un faisceau d'électrons.

5.2. Différents types de croissance d'un métal sur un oxyde

Le substrat sur lequel le dépôt se fait joue un rôle important dans la formation d'une couche mince.

Dans le cas d'un système nonreactif metal-substrat, trois modes de croissance sont possibles [Gautier_94, Noguera_96, Chatain_86, Micha_02] qui sont présentés sur la fig. 5.1:

1. couche par couche Frank van der Merwe (mode 2D) – il y a une forte adhésion métal substrat par rapport à la cohésion entre les atomes métalliques.
2. le mode des îlots Volmer Weber (3D) – dans ce cas l'énergie de cohésion du métal est plus forte en comparaison avec l'énergie d'adhésion entre la particule et le substrat.
3. le mode Stanski Krastanov, couche+îlots – correspond à la formation de particules tridimensionnelle dans une couche métallique qui croît couche par couche.

Les plus importants paramètres de croissance sont :

- la *température du substrat* qui peut influencer la diffusion et les processus d'inter diffusion mais aussi la possibilité d'une épitaxie. La température du substrat peut jouer aussi sur la densité de défauts sur la surface ;
- la *pression ambiante* ;
- le *type du substrat utilisé*, en particulier sa structure cristallographique qui est un facteur déterminant pour l'épitaxie. La présence de défauts peut influencer le mode de nucléation et la composition du substrat peut modifier la nature des liaisons chimiques.

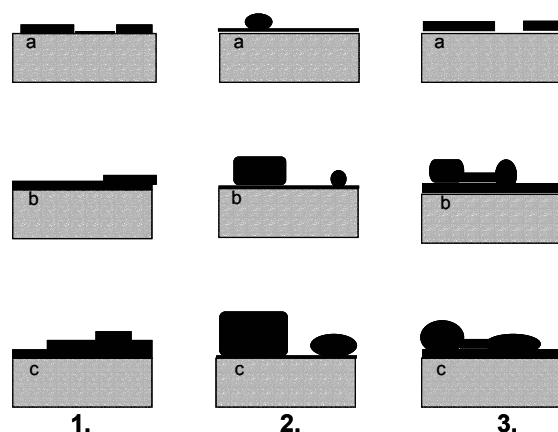


Fig. 5.1 Les modes de croissance d'un système nonreactif metal-substrat : 1) couche par couche Frank van der Merwe (mode 2D), 2) le mode des îlots Volmer Weber (3D) et 3) le mode Stanski Krastanov couche+îlots [Gautier_94]

Le système que nous avons choisi d'étudier est composé d'une couche de Co déposée par évaporation sur un substrat de SiO₂ et SiN. La méthode et les paramètres de dépôt ont été décrits plus en détail dans le chapitre 2.

Le mode de croissance du Co sur SiO₂ et SiN fait partie du mode de croissance Volmer- Weber à la température ambiante, le Co ayant une forte énergie de surface. Quand l'épaisseur de la couche de Co est inférieure à 20 Å ce mode de croissance conduit à la formation des nanoparticules de Co dans une matrice d'oxyde. La couche de Co devient continue quand l'épaisseur du Co dépasse 20 Å [Micha_02].

En diminuant la température de dépôt, la couche de Co devient continue à faibles épaisseurs. La diminution de la température du dépôt conduit à la réduction de la mobilité atomique en surface du substrat, donc les atomes n'ont pas une énergie suffisante pour diffuser et former des îlots.

5.3. Préparation et caractérisation magnétique des échantillons

5.3.1 Préparation et caractérisation des couches continues de Co sur SiO₂

Des couches de Co d'épaisseurs variant entre 10 et 20 Å ont été déposées sur un substrat de SiO₂ à différentes températures, afin de déterminer les paramètres optimaux de dépôt qui conduisent à la formation d'une couche continue. La couche de Co est protégée par une couche d'Al de 20 Å épaisseur.

5.3.1.1 Optimisation de la température de dépôt

a) Température de dépôt : T_{ambiante}

Une couche de 15 Å de Co a été déposée à la température ambiante. Comme nous l'avons spécifié dans le paragraphe précédent on s'attend à ce que la couche soit discontinue.

Les cycles d'hystérésis, présentés sur la fig. 5.2, mesurés sur une couche de Co de 15 Å d'épaisseur obtenue en appliquant le champ externe parallèle et perpendiculaire à la couche sont identiques et ont une forme de « S ». Ce comportement indique que la couche est superparamagnétique (l'agitation thermique est supérieure à la barrière d'énergie liée à l'anisotropie magnétocristalline), conclusions qui pourraient soutenir l'idée de la formation des îlots de Co. La taille de ces îlots doit être suffisamment petite, quelques dizaines de nm afin d'avoir un comportement superparamagnétique.

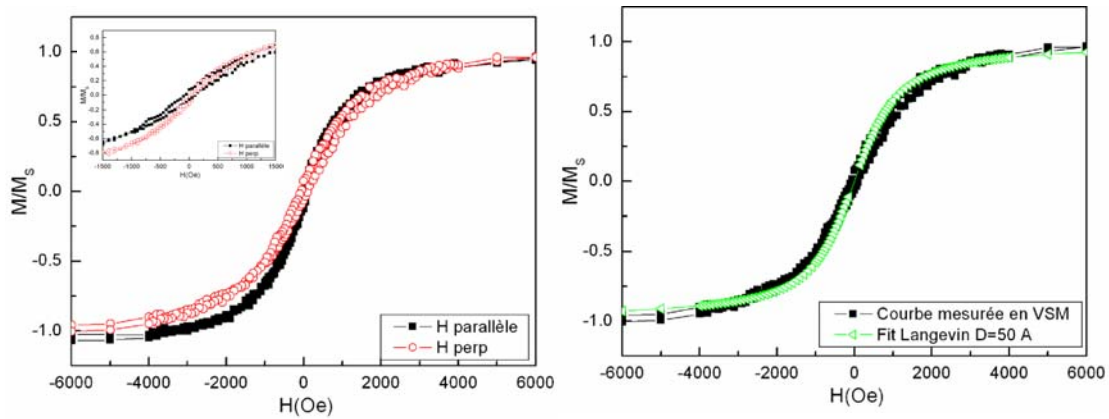


Fig. 5.2 a) Cycles d'hystérésis mesurés pour deux directions différentes du champ externe pour une couche de Co d'épaisseur 15 Å, à la température ambiante b) Fit Langevin de la courbe d'hystérésis mesurée en VSM

Une estimation de la taille des particules superparamagnétiques est possible par le fit de la courbe d'aimantation avec la fonction Langevin :

$$M = M_S^{Co} \cdot \left[\coth\left(\frac{\mu \cdot H}{k_B \cdot T}\right) - \frac{k_B \cdot T}{\mu \cdot H} \right] \quad (5.1)$$

où $\mu = M_S^{Co} \cdot V$, $V = \frac{\pi \cdot D^3}{6}$ et D le diamètre des particules [Gregg_94] [Ferrari_97] [Luis_02].

Dans notre cas le fit a conduit à un diamètre moyen des particules d'environ $D = 50 \text{ Å}$.

L'image topographique réalisée avec le microscope à force atomique (AFM) nous montre une couche qui semble être continue avec une rugosité très faible de $RMS=0.180\text{nm}$ (fig. 5.3).

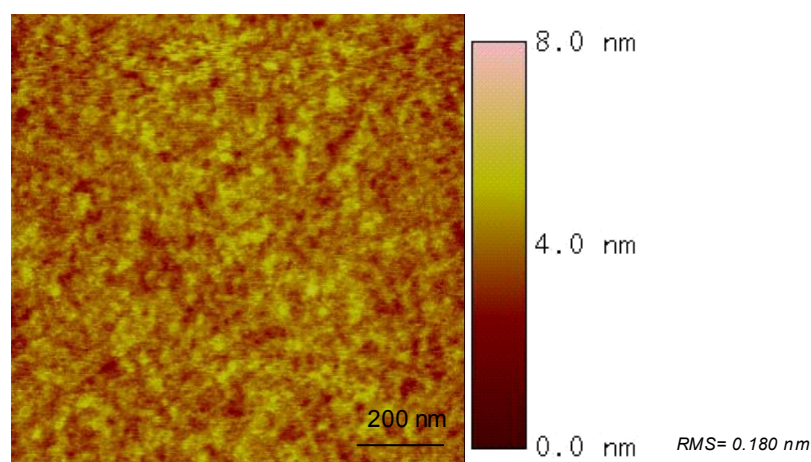


Fig. 5.3 Image topographique obtenue en AFM d'une couche de 10\AA de Co, déposée à la température ambiante

Ce résultat paraît en contradiction avec la conclusion que la couche est formée d'îlots, mais si on tient compte du fait que la taille d'une pointe AFM est de quelques dizaines de nm donc plus grande par rapport à la taille des îlots superparamagnétiques, on peut conclure que la pointe n'a pas une résolution suffisante pour mettre en évidence la présence de ces îlots sur la surface étudiée.

b) Température de dépôt : $T = -110^\circ\text{C}$

Afin d'obtenir une couche continue de Co, la variation des conditions de dépôt de la couche s'avère nécessaire. Un des paramètres de dépôt qui a été varié est la température du substrat, température qui a été diminuée.

L'utilisation de faibles températures de dépôt autorise une mobilité des atomes en surface encore suffisamment importante pour que ceux-ci trouvent leur position la plus favorable en fonction des énergies de surface mais suffisamment faible pour que les échanges ultérieurs dans le cœur des couches soient rares.

Plusieurs dépôts ont été réalisés en variant la température du substrat au cours de dépôt. Cette variation a été réalisée par l'introduction de N_2 liquide dans un réservoir en échange thermique avec le porte- substrat pendant des périodes de temps de 15 min à 35 min. L'absence d'un thermocouple au niveau du porte- substrat ne permet pas de connaître avec précision de la température au niveau du substrat.

Nous allons maintenant présenter les propriétés magnétiques des couches déposées à des différentes températures et pour commencer une couche de Co d'épaisseur 10 Å a été déposée à -110°C.

Des cycles d'hystérésis ont été mesurés en appliquant le champ externe parallèle et perpendiculaire au plan de la couche et elles sont présentées sur la fig. 5.4. Comme on peut voir, on obtient de nouveau deux courbes qui sont presque identiques et qui ont une forme de « S » mais une faible hystérésis est visible. Ceci peut conduire à la conclusion que la couche commence à avoir un faible comportement ferromagnétique (10%) qui est mélangé avec le comportement superparamagnétique (90%).

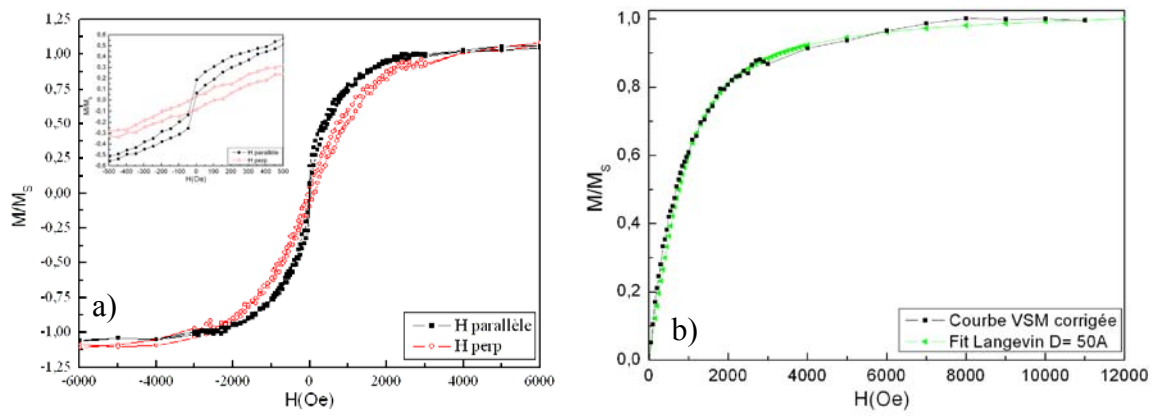


Fig. 5.4 a) Courbe d'hystérésis pour une couche de 10 Å de Co, le champ externe étant appliqué dans le plan de la couche et perpendiculaire au plan b) Fit avec la fonction Langevin de la courbe mesurée avec H dans le plan de la couche

La taille des particules qui donnent le comportement superparamagnétique a été estimée par le fit de la courbe d'aimantation avec la fonction Langevin (voir le paragraphe a). Tout d'abord la composante ferromagnétique $M^{FM}(H)$ a été soustraite de la courbe mesurée avec le champ magnétique H dans le plan de l'échantillon $M(H)$ [Viegas_97].

$$M^{SPM}(H) = M(H) - M^{FM}(H) \quad (5.2)$$

Le diamètre moyen des particules obtenu est de 50 Å. On observe que la taille des particules ne change pas par rapport à la taille des particules obtenues par le dépôt à la température ambiante.

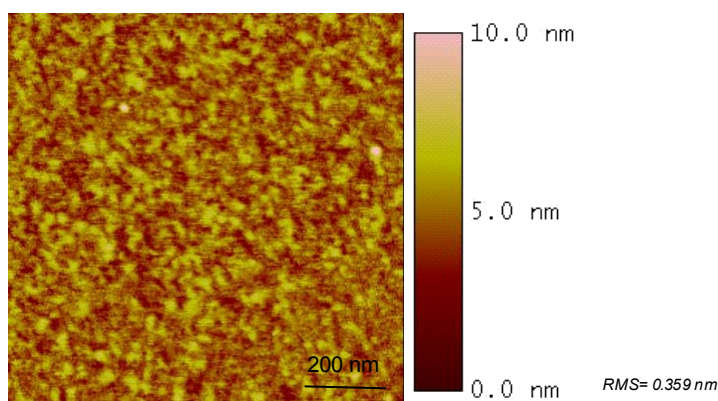


Fig. 5.5 Image topographique obtenue en AFM d'une couche de Co d'épaisseur 10 Å

Les images AFM montrent une couche continue avec une faible rugosité $RMS = 0.36$ nm pour Co(10 Å)/Al(20 Å), rugosité qui est plus grande que celle obtenue pour la couche déposée à l'ambiante (fig. 5.5).

Ces résultats sont de nouveau en apparente contradiction avec les conclusions antérieures des mesures VSM mais comme nous l'avons montré les îlots sont encore trop petits pour être mis en évidence par AFM.

c) Température de dépôt $T = -120^\circ\text{C}$ (30 min de N_2)

En diminuant encore la température du substrat jusqu'à -120°C , on a déposé une couche de Co avec la même épaisseur qu'avant : 10 Å.

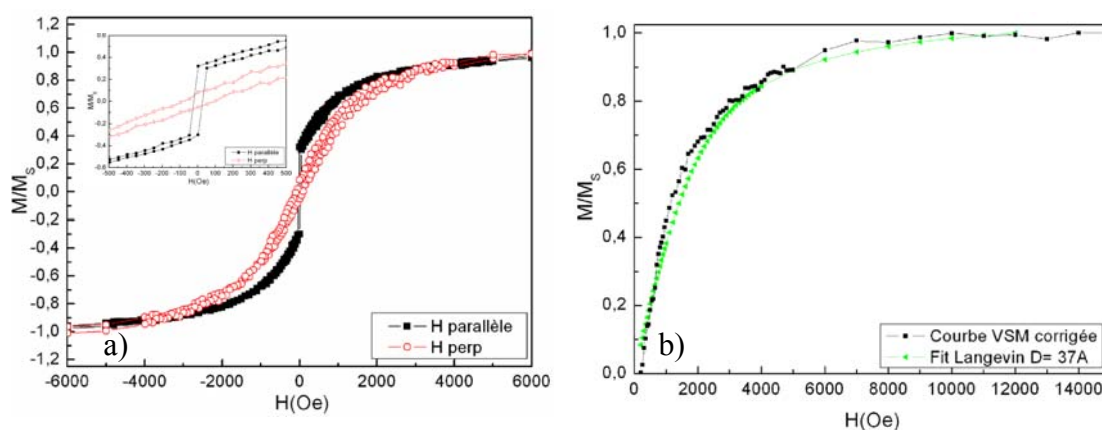


Fig. 5.6 a) Cycles d'hystérésis mesurés en a) $T = -120^\circ\text{C}$ pour une épaisseur de Co de 10 Å, le champ externe étant appliqué dans le plan de la couche et perpendiculaire au plan b) Fit avec la fonction Langevin pour la courbe mesurée avec H parallèle

On observe cette fois un comportement ferromagnétique marqué (30%), superposé à un comportement superparamagnétique (60%) (fig. 5.6a). Ceci peut suggérer que la couche

déposée à cette température est presque continue. Le champ coercitif observé pour cette couche de 10 Å de Co est supérieur à celui de la couche déposée à -110°C et il est d'environ 25 Oe.

Sur la courbe mesurée avec H parallèle à l'échantillon après l'extraction du comportement ferromagnétique un fit avec la fonction Langevin a été réalisé. Ceci a conduit à un diamètre moyen des particules superparamagnétiques $D = 37$ Å (fig. 5.6b).

Les courbes d'aimantation mesurées à basses températures 10K, 100K pour Co 10 Å sont présentées sur la fig. 5.7a. Ces courbes sont caractéristiques pour une couche qui a un comportement ferromagnétique important. En diminuant la température de mesure des courbes d'aimantations on observe une augmentation du champ coercitif par rapport à la valeur à l'ambiante. Pour $T = 10$ K, le champ coercitif est de 50 Oe.

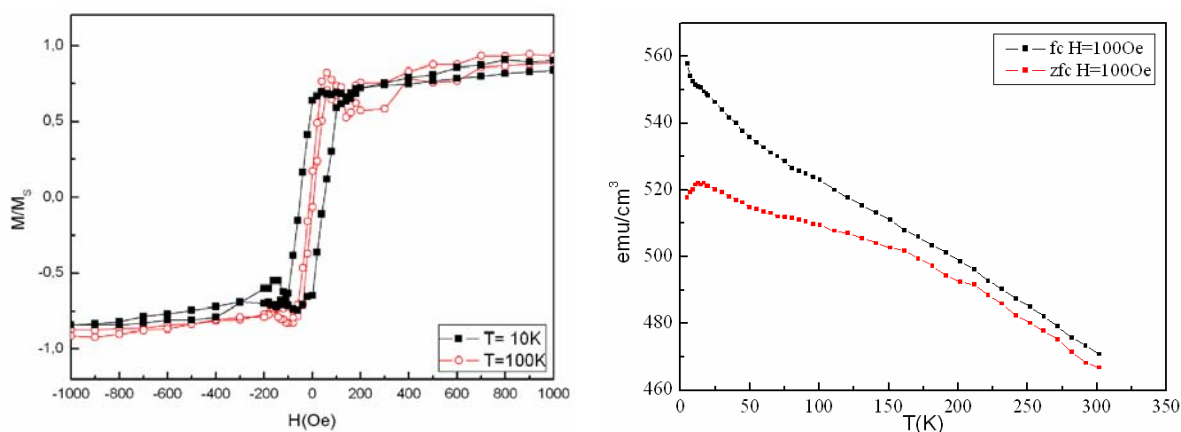


Fig. 5.7 a) Cycle d'hystérésis à basse température pour une couche de 10 Å de Co mesuré dans le plan de l'échantillon ; b) Cycles ZFC-FC pour la même couche

Pour le même échantillon une courbe ZFC-FC a été mesurée (fig. 5.7b).

La partie FC est obtenue en mesurant $M(T)$ dans un champ faible, $H = 100$ Oe après le refroidissement de l'échantillon dans un grand champ $H = 5000$ Oe. Donc à 0K, les moments magnétiques sont tous gelés suivant la direction du champ appliqué. En augmentant la température de mesure les moments magnétiques commencent à se débloquent et comme le champ de mesure n'est plus suffisant pour maintenir les moments magnétiques alignés, on observe une décroissance du moment magnétique totale de l'échantillon.

La courbe ZFC a été mesurée dans un champ $H = 100$ Oe après un refroidissement dans un champ nul. Elle nous montre que l'aimantation croît rapidement avec l'augmentation de la température entre 0 et 10K pour diminuer ensuite, à mesure que les moments magnétiques se débloquent.

Sur la courbe FC on observe que les valeurs de l'aimantation à la saturation sont inférieures à celles du Co massif ($M_S=1445 \text{ emu/cm}^3$). L'explication consiste dans la présence autour des particules d'une couche d'aimantation réduite. L'existence de cette couche peut être due à la présence de spins de surface déviés par rapport à la direction du champ même sous 5000 Oe. Elle peut aussi être due à la présence des ions paramagnétiques en bordures d'agrégats dans une zone entre les agrégats et la matrice d'Al et/ou isolé dans la matrice.

Toutes les caractérisations magnétiques réalisées jusqu'à présent montrent un important comportement ferromagnétique de la couche de Co de 10 Å ce qui conduit à la conclusion que la couche est relativement continue.

Cette conclusion est soutenue par les mesures AFM qui montrent une couche continue avec une rugosité très faible, $\text{RMS}=0.187 \text{ nm}$ (fig. 5.8b) qui a une valeur plus petite que celle de la couche déposée à $T=-110^\circ\text{C}$.

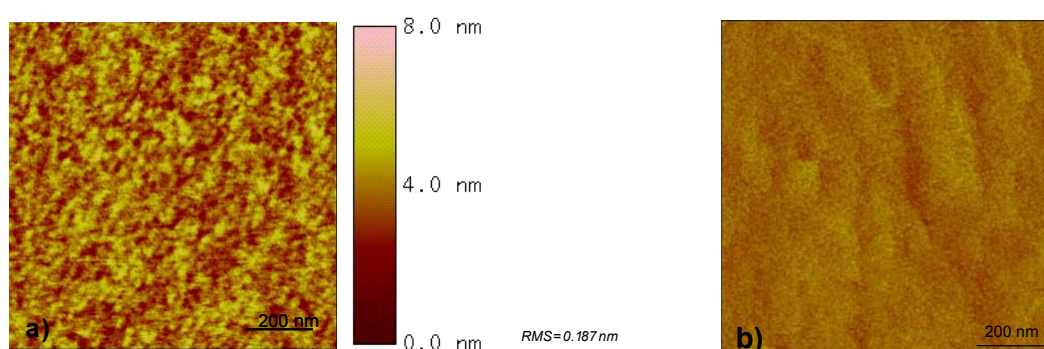


Fig. 5.8 a) image topographique d'une couche de 10 Å de Co et b) l'image magnétique de la même couche

Nous avons caractérisé aussi la couche avec l'aide du microscope à force magnétique (MFM). L'image obtenue montre, comme on peut voir sur la fig. 5.8a, l'existence d'un contraste magnétique de type « ripple » qui est le résultat d'une structure polycristalline irrégulière [Hubert_98].

c) Température de dépôt $T=-145^\circ\text{C}$

Nous avons encore diminué la température de dépôt jusqu'à -145°C , en ajoutant du N_2 dans la chambre de dépôt pendant 45 min.

Pour une couche d'épaisseur 10 Å on retrouve de nouveau un comportement superparamagnétique prépondérant (90%) avec un très faible comportement ferromagnétique

(10%), voir les courbes d'aimantations qui sont presque identiques pour les deux orientations du champ et qui ont une évidente forme de « S » (fig. 5.9a).

Un fit avec la fonction Langevin pour la courbe d'aimantation mesurée avec H parallèle à la couche a été réalisé (fig. 5.9b). Le diamètre des particules de Co pour lequel on a obtenu le meilleur fit est de 55Å.

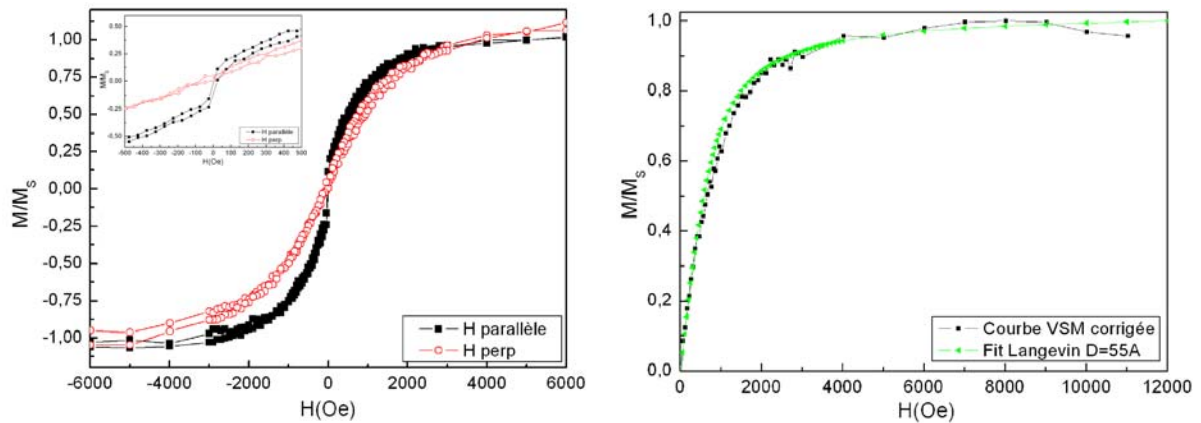


Fig. 5.9 a) Cycles d'hystérésis mesurés pour une couche de 10Å déposée à -145°C , le champ externe étant appliqué dans le plan de la couche et perpendiculaire au plan; b) Fit Langevin de la courbe mesurée avec le champ dans le plan de l'échantillon

L'image AFM de la couche 10Å de Co montre l'apparition d'une structure granulaire, les particules sont assez petites mais arrangées dans une structure très compacte (fig. 5.10).

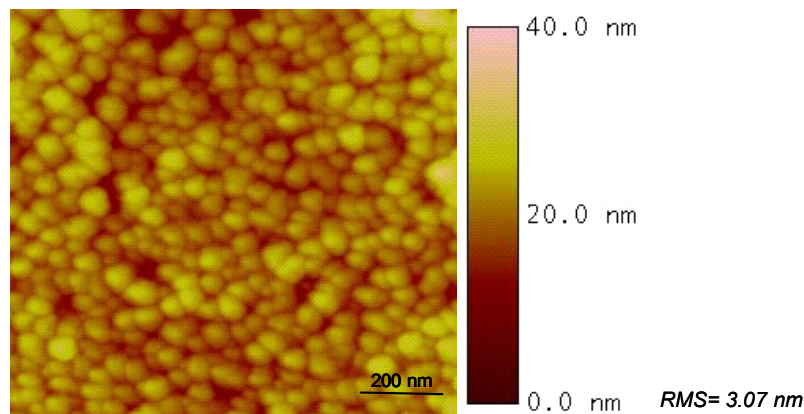


Fig.5.10 Image topographique réalisée avec l'aide d'un AFM pour la même couche

Les particules de forme ronde ont un diamètre qui varie entre $d=44$ nm et $d=60$ nm avec une moyenne de 50 et une épaisseur de $h=11$ nm. Connaissant la taille moyenne de ces particules on peut estimer si toute la couche de Co a coalescé en formant ces petites particules.

Sur une surface de $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ il y a environ $N=190$ particules. Connaissant leur taille moyenne on détermine le volume total de ces particules :

$$V = N\pi\left(\frac{d}{2}\right)^2 h = 4,1 * 10^6 \text{ nm}^3 \quad (5.3)$$

Comme le volume total du matériau déposé, Co et Al sur la même surface est de :

$$V = 1\mu\text{m} * 1\mu\text{m} * (e_{\text{Co}} + e_{\text{Al}}) = 4 * 10^6 \text{ nm}^3 \quad (5.4)$$

La différence entre ces deux volumes calculés devrait représenter le volume occupé par le Co et Al qui n'ont pas participé à la formation des particules. Comme on peut voir les volumes calculés sont égaux donc on peut dire que toute la couche a participé à la formation des particules.

Une différence importante entre le diamètre estimé par le fit avec la fonction Langevin et par AFM existe. Elle peut être causée par une sous-estimation/ sur-estimation du diamètre par le fit Langevin/méthode AFM. Une autre explication pourrait être le fait que dans le premier cas l'épaisseur de la couche d'Al n'a pas été prise en compte.

La comparaison entre les propriétés magnétiques de la couche de 10\AA déposée sur SiO_2 à trois différentes températures : -110°C , -120°C et -145°C nous a indiqué que pour une température d'environ -120°C le dépôt présente le comportement ferromagnétique le plus important.

5.3.1.2 L'influence de l'épaisseur de la couche et de la température de recuit sur ses propriétés magnétiques

a) dépendance avec l'épaisseur

Pour la température optimale de dépôt (-120°C), des dépôts ont été réalisés en variant l'épaisseur de Co de 10\AA à 30\AA .

Les courbes VSM montrent que le comportement ferromagnétique se renforce quand l'épaisseur de la couche de Co augmente (fig. 5.11). La rugosité reste encore faible quelque soit l'épaisseur de Co déposée. Les valeurs de la rugosité varient entre 0.18 nm et 0.3 nm .

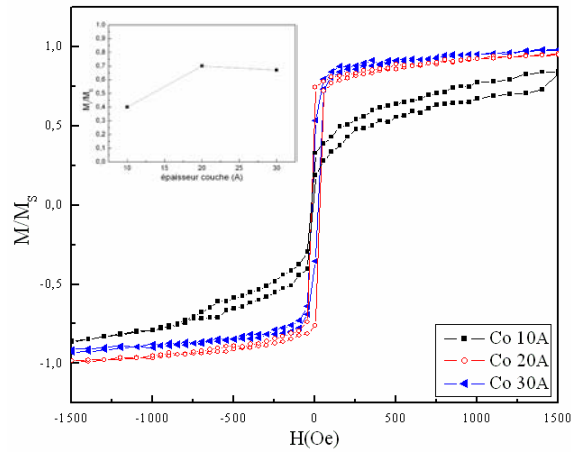
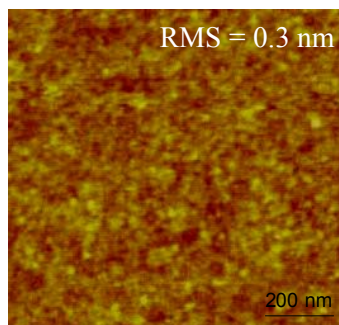


Fig. 5.11 Cycles d'hystérésis mesurés à la température ambiante pour une couche de 10 Å, 20 Å et 30 Å suivant l'axe facile

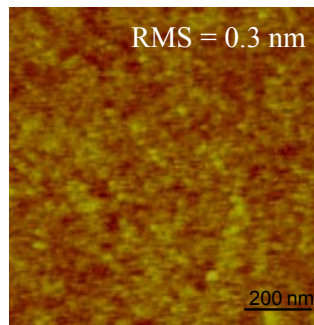
b) dépendance avec la température de recuit

Afin de déterminer la température à laquelle on doit chauffer les couches pour qu'elles se scindent en îlots, les échantillons ont été recuits sous un vide de 10^{-5} torr, pendant 30 minutes à des températures de 300°C, 400°C, 500°C, recuits suivis par un refroidissement à la température ambiante d'environ 20 min.

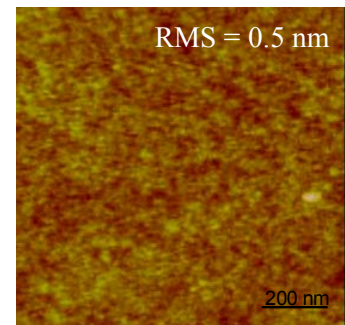
Une analyse topographique a été effectuée sur les couches ainsi obtenues par le microscope à force atomique (AFM). Elle révèle que les couches sont restées continues même après un recuit à 500 °C et que la rugosité n'a presque pas variée (fig. 5.12).



a)



b)



c)

Fig. 5.12 Images topographiques obtenues en AFM pour les couches a) 10 Å, b) 20 Å et c) 30 Å recuites à 500°C

Pour la couche Co d'épaisseur 10 Å, qui avait au départ une rugosité de 0.18 nm, la rugosité a augmenté à 0.24 nm pour le recuit effectué à 300°C, 0.30 nm pour le recuit à 400°C et 500°C.

Dans le cas de la couche d'épaisseur 20 Å, la rugosité ne varie pas avec la température de recuit, elle reste autour de 0.3 nm.

Pour la couche d'épaisseur 30 Å, la rugosité augmente d'une valeur de 0.2 nm avant le recuit jusqu'à 0.52 nm.

Donc, d'après les mesures AFM, on pourrait conclure que le recuit des couches de différentes épaisseurs jusqu'à une température de 500°C n'a pas conduit à des changements importants dans la topographie des couches, en tout cas pas des changements qui peuvent être mis en évidence par AFM.

Les cycles d'hystérésis mesurés pour les couches avec trois épaisseurs différentes de Co avant et après recuit sont présentés sur la figure 5.13.

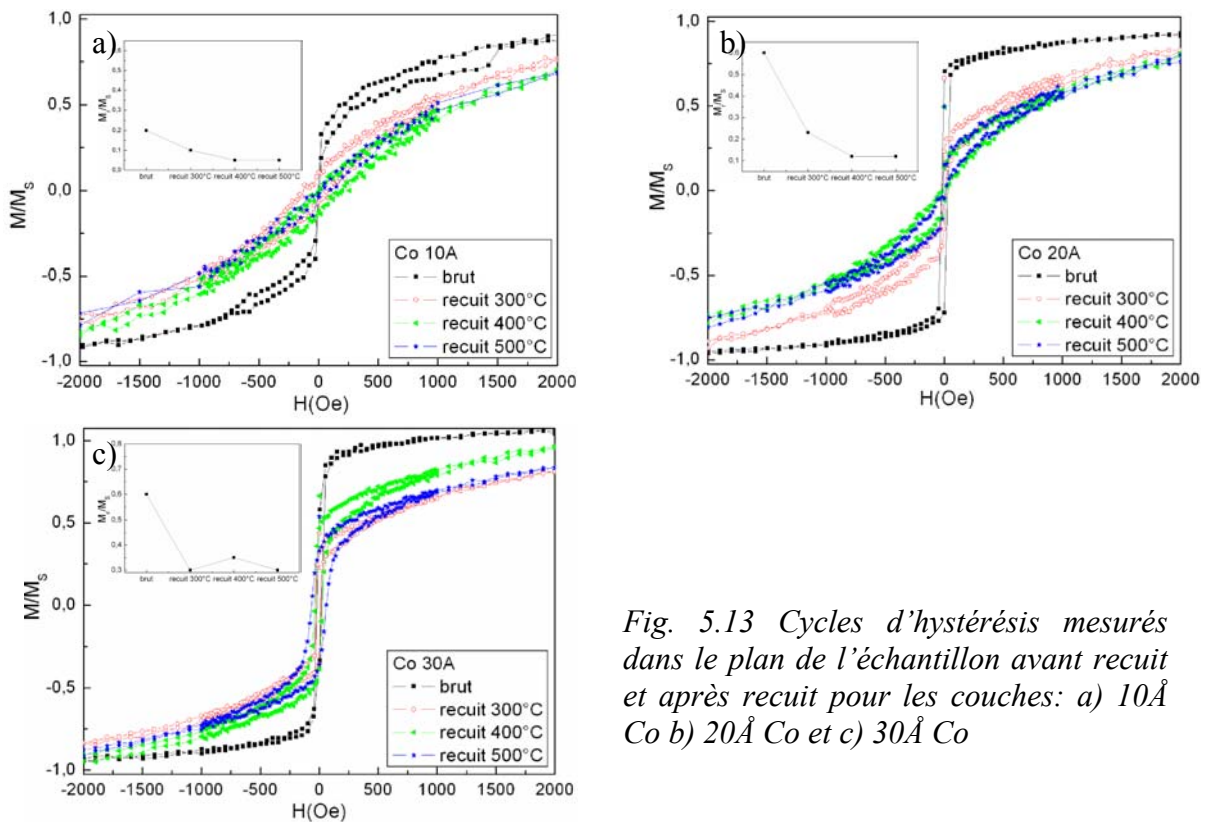


Fig. 5.13 Cycles d'hystérésis mesurés dans le plan de l'échantillon avant recuit et après recuit pour les couches: a) 10Å Co b) 20Å Co et c) 30Å Co

Les cycles d'hystérésis correspondants à la couche d'épaisseur 10Å recuite à 300°C, 400°C et 500°C montrent que le comportement ferromagnétique disparaît avec le recuit et on retrouve de nouveau des courbes en forme de « S » qui décrivent un comportement superparamagnétique. Le fit de ces cycles d'hystérésis avec la fonction Langevin nous a

permis de déterminer que le diamètre des particules superparamagnétiques avant et après chaque recuit est le même autour 50 Å.

Après le recuit à 300°C, 400°C et 500°C les courbes d'aimantations indiquent qu'on a encore un comportement ferromagnétique dans les couches de 20Å épaisseur, même s'il est beaucoup plus faible par rapport à la couche non recuite. Tous les échantillons recuits indiquent la coexistence de deux phases, l'une superparamagnétique, l'autre ferromagnétique. Ceci indique que la couche continue initiale s'est partialement disloquée en îlots. Le diamètre des particules superparamagnétique dans les couches recuites à ces trois températures, déterminé par le fit des cycles d'aimantation avec la fonction Langevin est de 50 Å, diamètre qui a diminué par rapport au diamètre des particules superparamagnétiques dans la couche non recuite qui était de 60 Å.

Les petits îlots isolés contribuent à la phase superparamagnétique tandis que le reste de la couche continue contribue à la phase ferromagnétique. Il faut noter que la contribution ferromagnétique tend à baisser quand T_{recuit} augmente.

Dans le cas de la couche Co 30Å après chaque recuit le comportement ferromagnétique subsiste mais tend à diminuer au fur et à mesure que T_{recuit} augmente. Le champ coercitif H_c augmente avec la température de recuit ce qui peut suggérer qu'à des températures de recuit importantes la couche se divise quasiment en totalité en particules de tailles suffisamment grandes pour être ferromagnétiques et en interaction magnétostatique les unes avec les autres. Du fait du positionnement désordonné des particules, les interactions magnétostatiques sont relativement aléatoires ce qui conduit à un comportement macroscopique de type ferromagnétique désordonné. On observe aussi une augmentation du champ nécessaire à saturer les couches avec la température de recuit.

Le faible comportement superparamagnétique montré par les couches de 30Å recuites est dû à la présence des particules superparamagnétiques de diamètre d'environ 40Å, diamètre déterminé par le fit des cycles d'hystérésis avec la fonction Langevin.

En conclusion, le recuit jusqu'à une température de 500°C montre que pour des épaisseurs de Co de 10Å le comportement ferromagnétique disparaît, indiquant la formation de petites particules de Co et Al sur la surface du SiO₂. Donc une température même inférieure à 500°C est suffisante pour diviser une couche de 10Å dans des petites particules. Pour des épaisseurs plus grandes 20Å le comportement ferromagnétique tend à diminuer mais néanmoins subsiste. Pour 30Å de Co la température de recuit doit dépasser 500°C pour transformer la couche continue dans une couche discontinue.

Nous avons trouvé une température optimale de dépôt qui permet d'obtenir des couches de Co présentant un comportement ferromagnétique, ce qui suggère que ces couches sont continues. Le recuit des ces couches à des températures qui varient entre 300°C et 500°C, conduit à une réduction, voir disparition du comportement ferromagnétique, effet attribué à une coalescence des couches en îlots.

5.3.2 Préparation et caractérisation des couches de Co sur SiN

Pour les observations TEM nous avons préparés des grilles spéciales SiN (leur préparation a été décrite dans le chapitre 2). Ainsi, il a été nécessaire d'optimiser le dépôt de Co également sur SiN, afin d'obtenir une couche continue.

Le dépôt de Co sur SiN s'effectue suivant les mêmes règles que sur SiO₂ et la température optimale de dépôt nécessaire à obtenir une couche continue se situe autour de -120°C.

Pour cette température de dépôt optimal, des couches de 10Å et 20 Å de Co ont été déposées, couches qui ont été protégées par 20Å d'Al contre l'oxydation naturelle.

Les cycles d'hystérésis obtenus pour une couche de 10 Å de Co montrent un comportement ferromagnétique mélangé avec un faible comportement superparamagnétique fig. 5.14a.

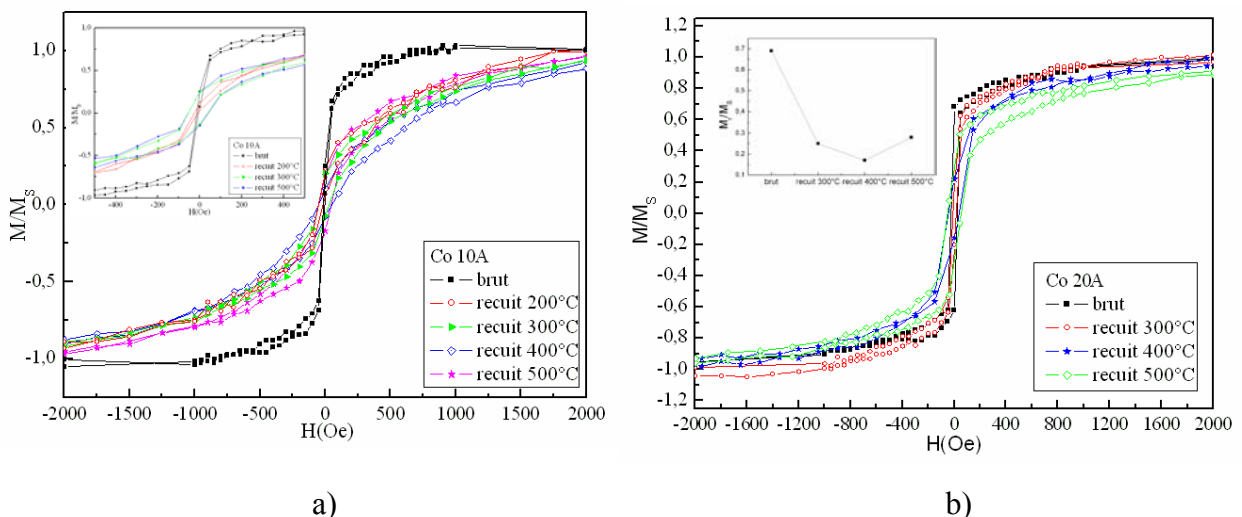


Fig. 5.14 a) Les cycles d'hystérésis pour Co 10 Å, brut et recuit à différentes températures ;
b) Les cycles d'hystérésis réalisées pour Co 20 Å brut et recuit à différentes températures

Si on augmente l'épaisseur du Co déposé sur SiN jusqu'à 20 Å le comportement ferromagnétique de la couche se renforce beaucoup au détriment du comportement superparamagnétique (fig.5.14b).

Comme l'irradiation des couches avec le faisceau d'électrons se réalise en chauffant l'échantillon in situ, des recuits ont été réalisés sur nos couches afin de déterminer la température de chauffage nécessaire pour diviser la couche dans des îlots.

Si les couches de 10Å et 20Å sont recuites à des températures entre 200°C et 500°C le comportement ferromagnétique diminue en faveur d'un comportement superparamagnétique. Cet effet est plus important pour la couche de 10 Å.

Si on compare les courbes pour la couche d'épaisseur 10 Å recuite à 200°C, 300°C et 500°C on observe un comportement superparamagnétique plus important pour la couche recuite à 200°C, la courbe ayant une forme de « S » et un champ coercitif d'environ 5 Oe. Pour les courbes recuites à 300°C et 500°C le comportement ferromagnétique est encore présent et les courbes d'aimantation montrent une hystérésis avec un champ coercitif plus élevé $H_c = 45$ Oe. D'après ces mesures on peut dire que le recuit à une température de 200°C conduit à la formation d'îlots superparamagnétiques donc de petite taille mais après un recuit à une température plus élevée, la taille des îlots augmente par la coalescence de petits îlots entre eux.

Les mesures AFM ont montré une augmentation de la rugosité avec l'augmentation de T recuit. La couche de 10 Å a au départ une rugosité de 0.336 nm et après le recuit à 500°C la rugosité a presque doublé (0.591 nm) (fig. 5.15a). De nouveau les images AFM des couches de 10 Å recuites à 300°C et 500°C montrent des couches qui semblent être continues qui n'est pas en accord avec les mesures d'aimantation qui montrent que le recuit a transformé la couche initiale ferromagnétique en une couche présentant un comportement superparamagnétique. Ceci peut s'expliquer par le fait que les particules formées ont un diamètre inférieur à la taille de la pointe AFM, donc inférieur à sa résolution spatiale.

Pour les couches de Co d'épaisseur 20Å, les images AFM montrent une augmentation de la rugosité avec l'augmentation de la température de recuit $R_{ms}(\text{brut}) = 0.32$ nm, $R_{ms}(500^\circ\text{C}) = 1.39$ nm (fig. 5.15b).

La couche Co 20 Å recuite à 500°C montre très clairement la formation de particules ayant un diamètre moyen de 120 nm et une épaisseur de 4.1 nm. L'estimation du volume occupé par les particules faites avec la méthode décrite dans le paragraphe 5.3.1.1 donne une

valeur proche du volume totale de la couche de 20Å Co et 20Å Al ce qui conduit à la conclusion qu'il ne reste pas de couche continue en dessous des particules.

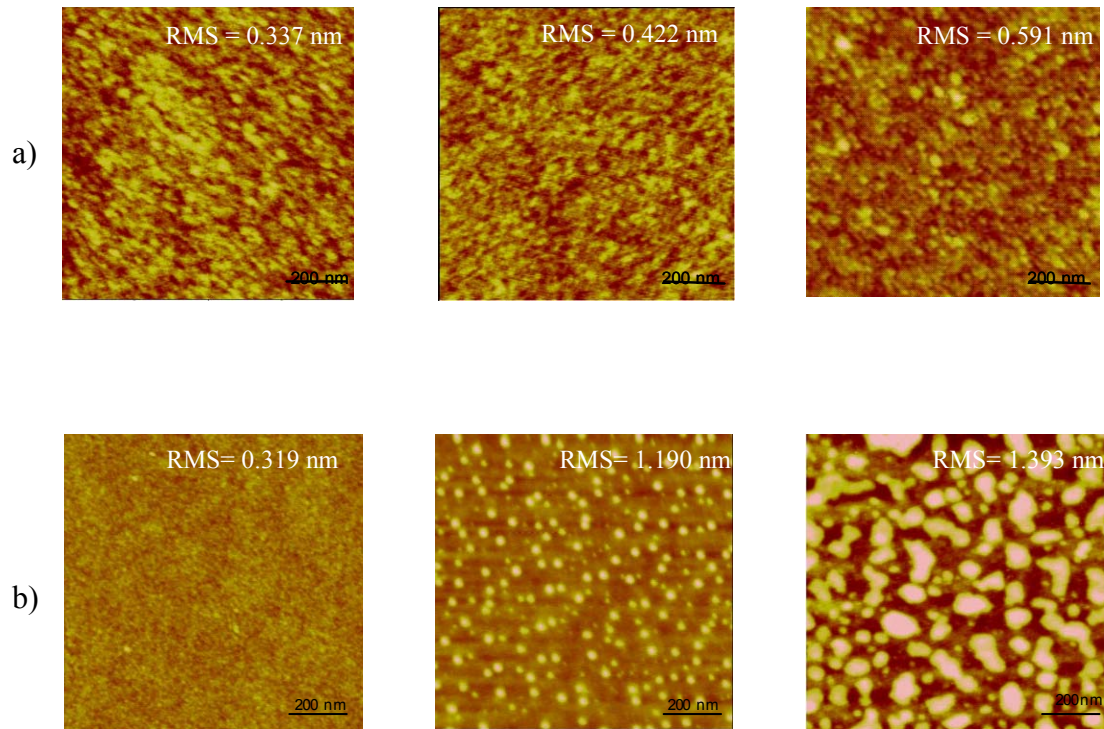


Fig. 5.15 a) image AFM de la couche de 10Å brut, recuit 300°C, recuite à 500°C b) image AFM de la couche de 20Å brut, recuit 300°C, recuite à 500°C

Le comportement ferromagnétique de la couche de Co de 20Å recuite à 500°C révélé par la courbe d'aimantation peut être expliqué par le fait que les particules ont une taille suffisamment grande pour avoir un comportement ferromagnétique.

Pour la couche brute de 20 Å Co, des cycles d'hystérésis à basses températures entre 10 K et 200K ont été mesurés mais aucune modification du H_c n'a été observé. Par contre, les cycles hystérésis réalisés à basses températures : 10K, 100K et 200K pour la couche Co 20Å recuite à 200°C et 500°C montrent une importante augmentation du champ coercitif lorsque la température de mesure diminue (fig. 5.16).

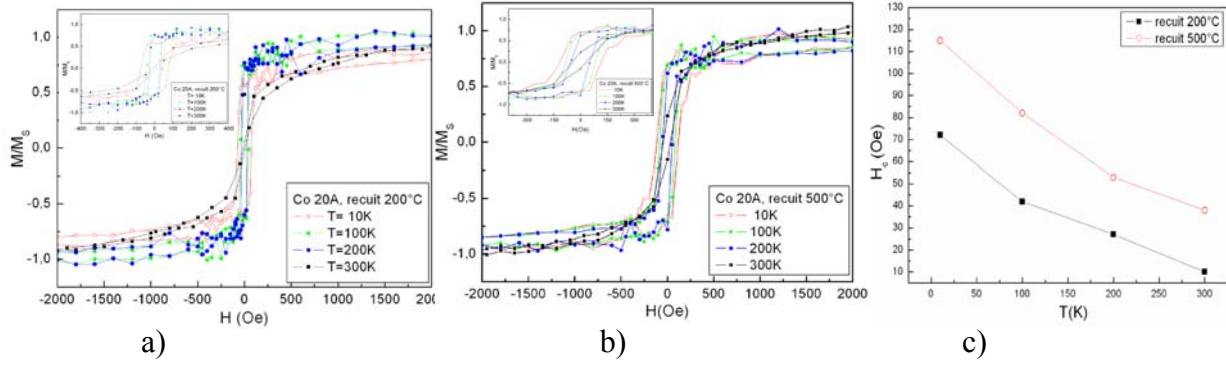


Fig. 5.16 Cycles d'hystérésis mesurées à basses températures pour la couche Co 20 Å recuite à : a) 200°C et b) 500°C ; c) La variation du champ coercitif pour les échantillons recuits à 200°C et 500°C en fonction de la température

Pour la couche de Co 10 Å recuite à 500°C nous avons effectué des mesures ZFC-FC qui sont présentées sur la fig. 5.17.

On peut observer que les courbes mesurées pour l'échantillon brut et recuit à 500°C ont la même forme. Dans ce deux cas dans la courbe FC l'aimantation varie très peu avec la température : $\Delta\left(\frac{M}{V}\right)$ (brut)= 120emu/cm³, $\Delta\left(\frac{M}{V}\right)$ (rec. 500°C)= 60emu/cm³. Donc on peut dire que le champ appliqué pendant la mesure H=100 Oe est suffisant pour saturer les échantillons. Puisque $H \sim H_{\text{sat}}$, la température où la courbe FC rejoint la courbe ZFC, T(brut)=140°C et T(recuit 500°C)= 270°C ne représente pas la température de blocage. Elle est en fait la température au dessus de laquelle le champ coercitif du système devient inférieur au champ de mesure permettant ainsi à l'aimantation de basculer dans la direction du champ appliqué. La faible courbure du FC montre en fait que le champ appliqué de 100 Oe est trop important pour mettre en évidence la température de blocage.

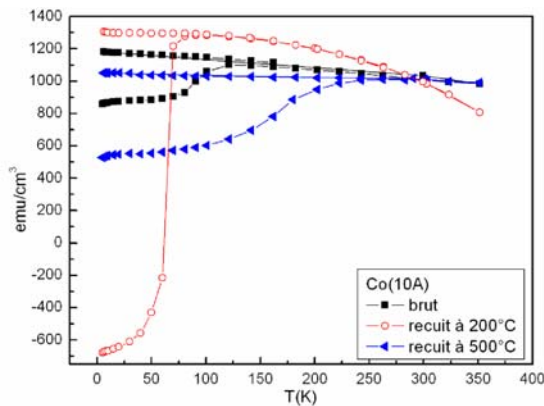


Fig. 5.17 Courbes ZFC-FC mesurées sur la couche de 10 Å de Co brut, recuit à 200°C et à 500°C

Donc d'après les courbes ZFC et FC la couche de Co 10 Å et la couche 10 Å recuite à 500°C ont un comportement ferromagnétique.

Dans le cas de la courbe de 10 Å recuite à 200°C même si $\Delta\left(\frac{M}{V}\right)(rec.200^{\circ}C) = 600 emu/cm^3$ qui est une valeur plus importante par rapport aux cas présentés précédemment on ne peut pas parler d'une température de blocage, la couche ayant comme le montrent les cycles d'hystérésis un comportement ferromagnétique mélangé avec un faible comportement superparamagnétique.

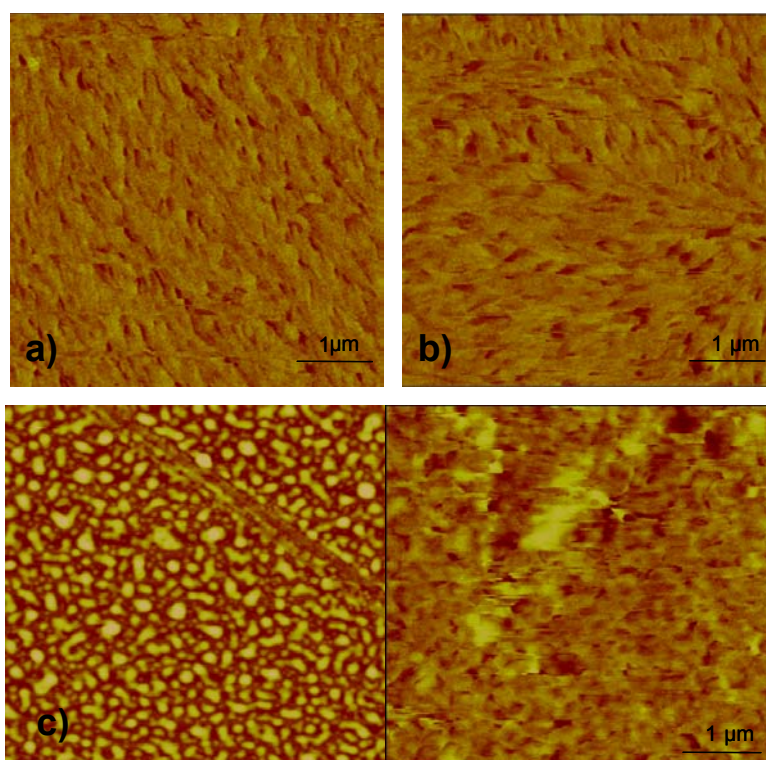


Fig. 5.18 Images MFM de la couche de 20 Å, recuite à : a) 200°C, b) 300°C et c) image magnétique et topographique de la couche de 20 Å recuite à 500°C

Le comportement ferromagnétique de la couche de 20 Å recuit à 200°C, 300°C et 500°C est soutenu aussi par les images MFM obtenues pour ces couches dans un champ magnétique externe de 400 Oe.

Les couches de Co ont une anisotropie dans le plan et présentent, comme on peut voir sur la fig.5.18a une structure de type « ripple » avec des domaines qui sont orientés dans la direction du champ appliqué. Sur la figure 5.18b les domaines semblent orientés dans des différentes directions qui peuvent être le résultat de l'influence du champ de fuite de la pointe.

Pour la couche recuite à 500°C l'image magnétique est plus complexe. (fig.5.18c)

Résumé et conclusions

Le dépôt à froid à une température de -120° a conduit à la formation d'une couche continue de Co sur les deux types de substrat SiO_2 et SiN. En fonction de l'épaisseur de la couche de Co, un faible comportement superparamagnétique peut apparaître mélangé au comportement ferromagnétique qui reste prépondérant.

Le recuit à des températures entre 200°C et 500°C conduit pour les couches déposées sur SiO_2 et également SiN à la réduction, voir disparition du comportement ferromagnétique. En conclusion, le comportement magnétique d'une couche de Co est semblable pour les deux types des substrats utilisés.

5.4 Irradiation par un faisceau d'électrons provenant du TEM

Plusieurs tests d'irradiation ont été réalisés, tout d'abord sur une couche discontinue de Co et ensuite sur une couche continue.

Dans la première partie de ce paragraphe sera discuté l'irradiation d'une couche discontinue de $\text{SiO}_2/\text{Co}/\text{SiO}_2$ à l'aide d'un faisceau d'électrons provenant d'un microscope TEM (la tension d'accélération des électrons est de 300kV). La couche a été déposée sur une grille TEM classique de Cu. La préparation et l'irradiation de ces couches ont été réalisées par B. Dieny et P. Bayle- Guillemaud, au CEA/DRFMC/SP2M Grenoble. Nous avons réalisé ensuite l'analyse de ces clichés afin de les comparer avec celles obtenues pour nos propres échantillons (les couches continues).

Pour des raisons techniques les couches continues de Co ont été déposées sur des grilles spéciales de SiN. Leur irradiation a été réalisée par le faisceau d'électrons d'un TEM et d'un microscope MEB (la tension d'accélération des électrons est de 20kV). L'influence de l'irradiation sera discutée dans la deuxième partie de ce paragraphe.

Le porte- échantillon du microscope TEM a permis l'échauffement de la couche in-situ jusqu'à une température de 400°C pendant le processus d'irradiation.

5.4.1 L'effet de l'irradiation de couches discontinues de Co/SiO_2

Des tricouches de $\text{SiO}_2(100\text{\AA})/\text{Co}(18\text{\AA})/\text{SiO}_2(100\text{\AA})$ ont été déposées à la température ambiante sur des grilles TEM de Cu, grilles couvertes par de carbone. Comme nous avons

montré précédemment, le dépôt à la température ambiante d'une couche de 18Å de Co sur SiO₂ conduit à la formation d'une couche discontinue (fig. 5.2a).

Toutes les images présentées dans ce paragraphe sont des cartographies chimiques du Co sur des vues planes où le Co est en contraste clair et le SiO₂ en contraste foncé.

Afin de mieux discerner l'effet du chauffage sur l'échantillon, une couche a été analysée tout d'abord dans son état brut, après dépôt, et ensuite elle a été chauffée in-situ 2 heures jusqu'à une valeur de T= 300°C.

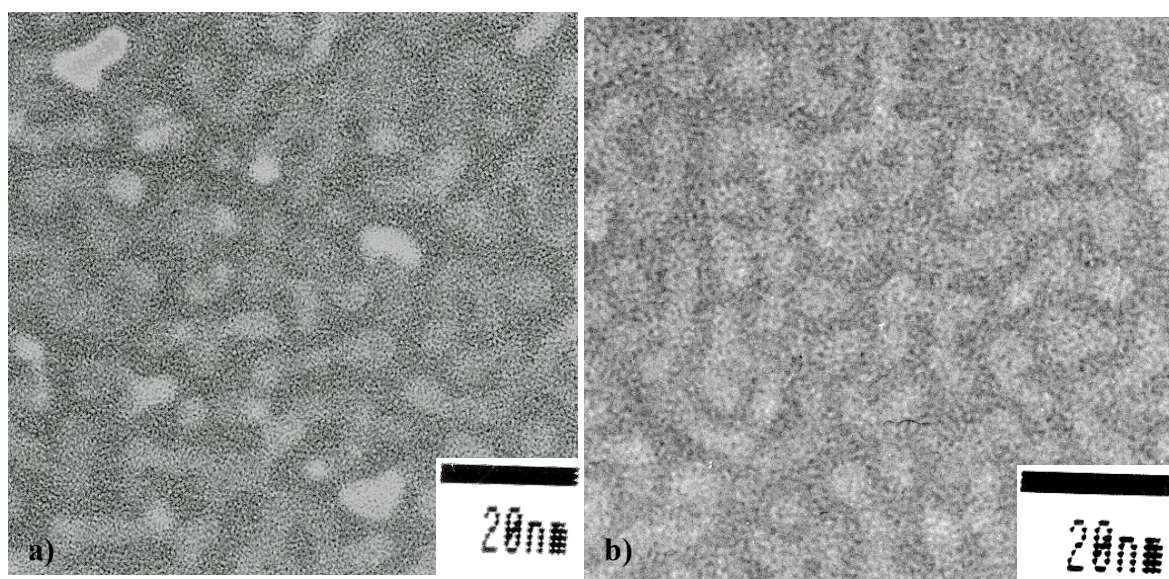


Fig. 5.19 Cartographie chimique (EELS¹) du Co sur l'échantillon : a) avant chauffage, b) après chauffage à 300°C. Ces zones n'ont pas été irradiées et le Co est en contraste clair

Comme on peut voir sur la fig. 5.19a et 5.19b, le chauffage in situ à 300°C n'a pas changé de façon significative la morphologie des particules de Co qui restent dans la grande majorité des particules allongées.

La longueur des particules allongées avant chauffage varie entre 8 et 24 nm et leur largeur entre 3 et 5 nm. Après chauffage la taille des particules n'a pas beaucoup changé, leur longueur varie entre 6 et 20 nm et la largeur entre 3 et 5 nm.

Sur la surface chauffée il y a un nombre moins important de particules rondes. Leur diamètre avant chauffage était compris entre 3 et 8 nm et après chauffage entre 2 et 6 nm.

Pour ces deux régions on a calculé la surface occupée par les particules de Co en approximant les particules allongées par des rectangles et les particules presque rondes par des disques. Le pourcentage de la surface occupé par le Co avant le chauffage est de 53% et

¹ EELS- Spectre de perte d'énergie des électrons

après le chauffage de 43%. On peut conclure que le chauffage a entraîné une petite contraction des îlots de Co mais l'effet reste faible à cette température de chauffage.

Comme le volume de la couche de Co est le même avant et après chauffage on peut déterminer la hauteur moyenne des nos particules en considérant les particules rondes comme des cylindres et celles allongées comme des parallélépipèdes. Les valeurs trouvées pour l'hauteur sont : avant chauffage environ 33 Å et après chauffage de 40 Å.

Au contraire une zone qui a été irradiée et chauffée en même temps présente des changements morphologiques importants, comme on peut le voir sur la fig.5.20. Cette figure présente six images de la même région de l'échantillon qui a été chauffée à 300°C et irradiée avec des temps d'irradiation différents.

Après une irradiation de 8 minutes (fig. 5.20a) la couche a toujours l'aspect d'un labyrinthe avec des particules de Co de formes allongées, particules qui sont encore liées les unes aux autres. Après un temps d'irradiation de 12 minutes (fig. 5.20b) on observe que les particules commencent à se disloquer en augmentant la surface libre qui les sépare. En augmentant encore le temps d'irradiation entre 45 minutes et 1 heure, on observe que les particules allongées de Co se scindent de plus en plus en particules plus petites de forme presque ronde (fig. 5.20c et 5.20d). Par coalescence de particules entre elles le diamètre de ces particules augmente avec le temps d'irradiation.

Nous avons trouvé que pour un temps d'irradiation d'environ 12 minutes la valeur moyenne du diamètre ne dépasse pas 6 nm.

Quand le temps d'irradiation est de 45 minutes il devient 9 nm et pour un temps d'irradiation de deux heures le diamètre des particules augmente encore et atteint une valeur moyenne de 16 nm.

L'analyse de la surface occupée par les particules dans la zone irradiée nous a montré que l'augmentation du temps d'irradiation conduit à la diminution de cette surface. Supposant que le volume de la tricoche SiO₂(10nm)/Co(1.8nm)/SiO₂(10nm) reste constant ceci conduit à la conclusion que l'hauteur des particules augmente aussi avec le temps d'irradiation. Dans le calcul de l'hauteur on a considéré les particules rondes comme des cylindres et les particules rectangulaires comme des parallélépipèdes de même hauteur h. Les particules qui composent la couche irradiée 12 minutes ont une hauteur de 41 Å. Quand le temps d'irradiation est de 1 heure l'hauteur est de 45 Å et après 2 heures d'irradiation l'hauteur des particules est de 52 Å.

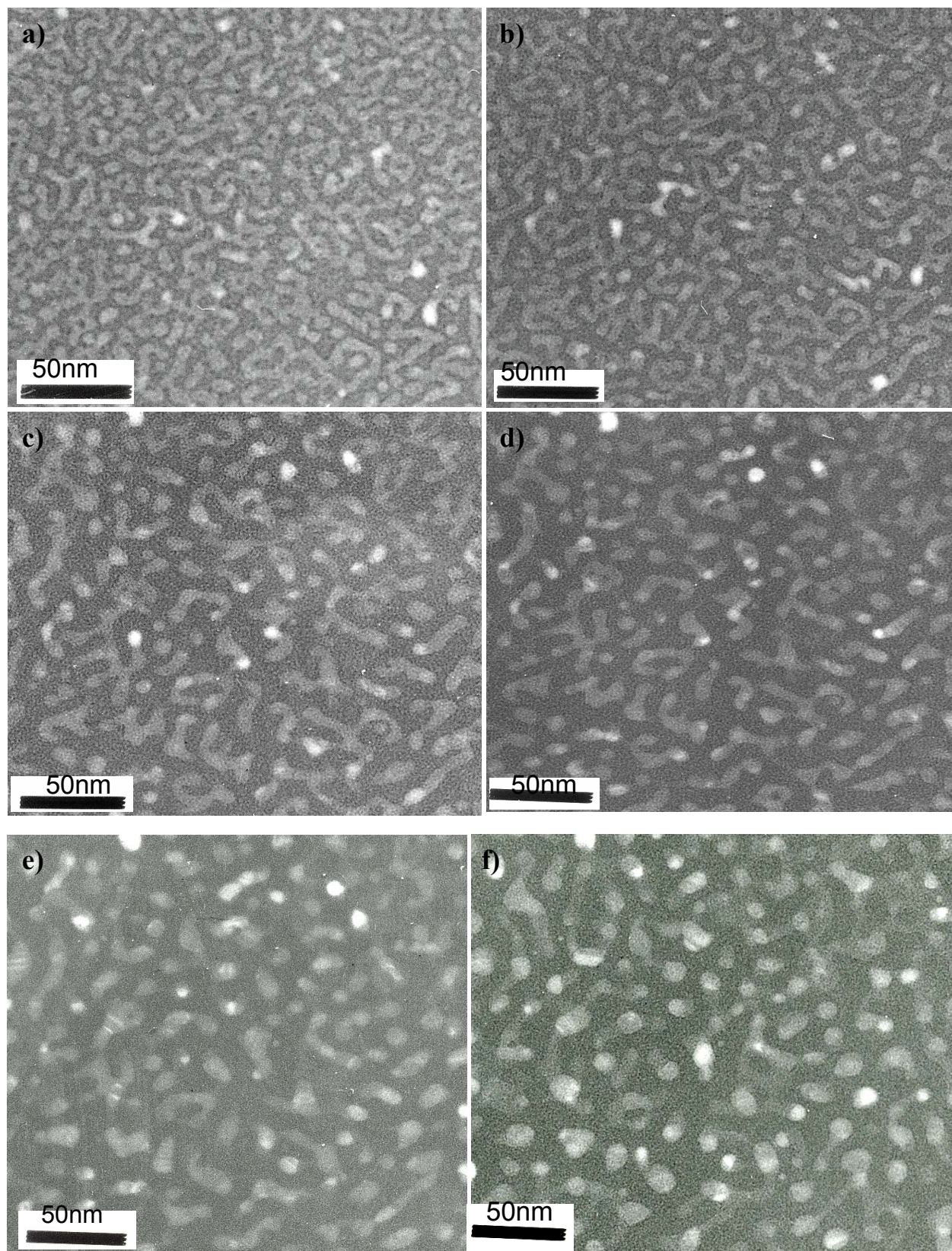


Fig. 5.20 La même zone de l'échantillon chauffée à 300°C et irradiée : a) 8min, b) 12min, c) 45min, d) 1heure, e) 1 heure et 22min, f) 2 heure

La comparaison avec les images obtenues sur la couche qui a été seulement chauffée nous permet d'affirmer que les changements observés dans la morphologie de la couche irradiée et chauffée sont le résultat de l'irradiation de la couche. L'irradiation de la couche peut favoriser la mobilité atomique de plusieurs façons :

1. En échauffant localement l'échantillon bien au dessus de la température nominale de chauffage.
2. L'irradiation électronique peut générer des défauts structuraux qui augment la mobilité atomique
3. Les particules métalliques étant insérées dans une matrice isolante peuvent se charger électrostatiquement. Leur répulsion mutuelle peut favoriser le phénomène de coalescence.

L'effet de l'irradiation de la couche de Co avec le faisceau d'électrons est plus évident si on compare la région irradiée avec une région qui n'a pas été irradiée (fig. 5.21). Les deux régions ont été chauffées in situ à la même température. Dans la région irradiée qui se trouve à droite on retrouve les particules rondes de Co, espacées et avec un diamètre d'environ 16 nm. La partie gauche de l'image représente une région qui n'a pas été irradiée dans laquelle les particules de Co sont restées allongées et plus serrées. Le halo clair au centre de l'image est lié à une pollution par du carbone en périphérie du faisceau d'électrons au cours de l'observation.

Dans cette image on peut voir très clairement que la coalescence des petites particules de Co est activée sous l'effet de l'irradiation.

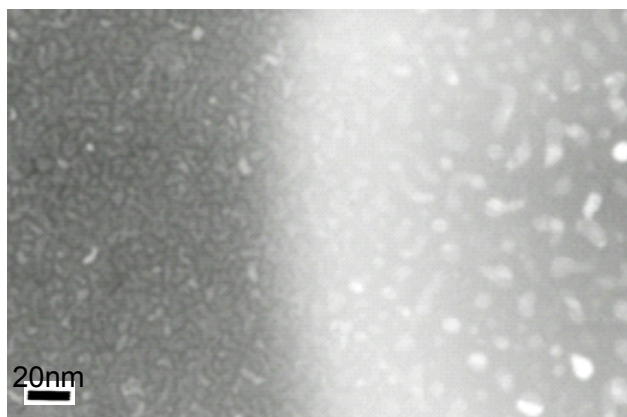


Fig. 5.21 Image au bord du faisceau d'une zone irradiée à 300°C pendant 3 heures à droite et une zone non irradié mais aussi maintenue à 300°C pendant 3 heures à gauche

Afin de vérifier si seule l'irradiation par le faisceau d'électrons d'une couche discontinue peut conduire à la formation des particules, une région de la taille du faisceau a été irradiée.

Comme on peut voir sur la fig.5.22 après une irradiation de 5 et 10 minutes les particules ramifiées qui constituent la couche initiale commencent à coalescer et deviennent de plus en plus séparées.

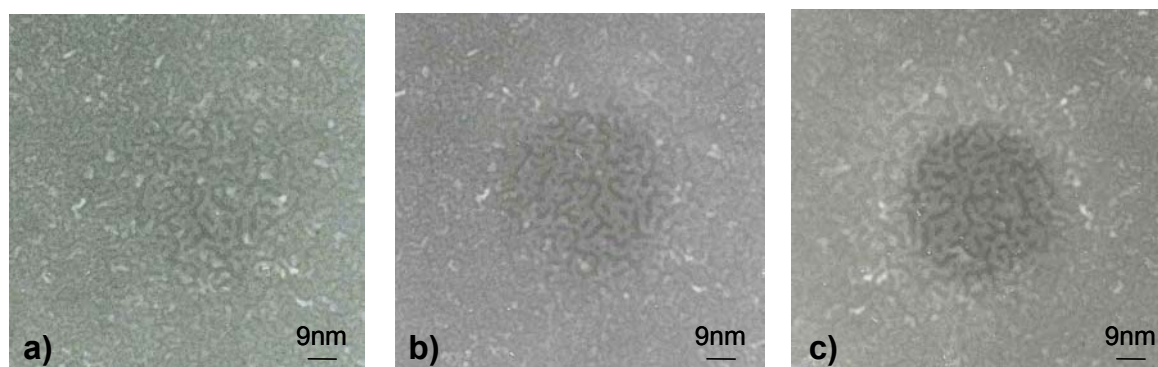


Fig. 5.22 Images TEM d'une couche de Co brut, irradiée avec un faisceau d'électrons focalisé, les temps d'irradiation sont : a) 1min, b) 5min, c) 10min. L'échantillon n'a pas été chauffé et le Co est en contraste claire

D'après ces observations on peut conclure que même sans chauffage in situ, une irradiation électronique suffisamment longue pourrait conduire à la formation des petites particules de Co. Toutefois le chauffage in- situ accélère la cinétique de coalescence ce qui montre que ce phénomène est activé thermiquement.

5.4.2. L'effet de l'irradiation de couches continues de Co/SiN

L'échantillon consiste d'une couche de Co protégée par une couche d'Al et déposée sur une grille SiN. Le dépôt a été réalisé dans les conditions optimales trouvées pour le substrat de SiN. Nous avons irradié deux échantillons avec des épaisseurs différentes de Co : 10 Å et 20 Å.

Epaisseur du Co : 10Å

Le premier échantillon de 10 Å de Co a été chauffé progressivement jusqu'à 350 °C et irradié. Après une irradiation d'1 heure et 30min on observe que des labyrinthes commencent à se former sur la surface de la grille.

La figure 5.23 montre une image de la couche avant irradiation (fig. 5.23a), après le chauffage (fig. 5.23b) et après irradiation (fig. 5.23c). Elle met clairement en évidence l'effet de l'irradiation et du chauffage sur la couche.

Pour vérifier que c'est bien le Co qui a coalescé et forme ces labyrinthes, une cartographie chimique par EELS a été réalisée sur la région irradiée. Le Co est représenté en contraste clair sur fig. 5.23d. En comparant cette image avec l'image structurale TEM 5.23c on peut conclure que c'est bien le Co qui a coalescé sous la forme de labyrinthes.

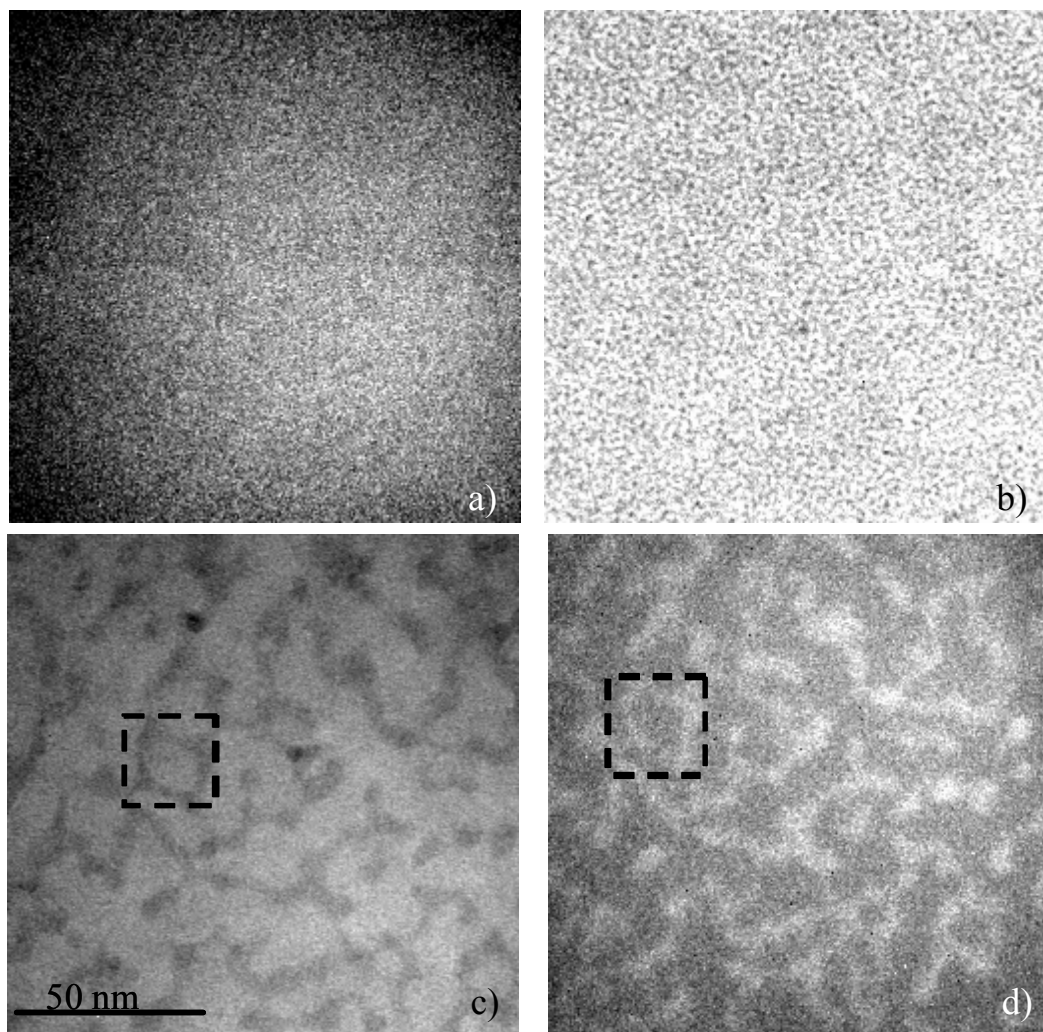


Fig. 5.23 Couche de Co d'épaisseur 10Å : a) avant chauffage image structurale TEM, b) chauffée à 300°C et non irradiée, image structurale TEM, c) chauffée et irradiée à 300°C images TEM d) chauffée et irradiée cartographie chimique EELS. Sur une image TEM le Co est en contraste sombre et sur une image EELS il est en contraste clair.

En approximant les labyrinthes par des particules allongées on a estimé que la surface occupée par la Co sur le substrat sur la fig. 5.23c représente 20% de la surface totale. Si on

considère le volume de Co constant la hauteur de ces particules doit être de :

$$h = \frac{S_{couche}}{S_{particules}} \cdot h_{couche} = 60 \text{ \AA}. \quad (5.5)$$

Epaisseur du Co : 20Å

Un autre échantillon avec une épaisseur de Co de 20Å a été irradié dans les mêmes conditions que l'échantillon précédent afin d'étudier l'influence de l'épaisseur (fig. 5.24) sur la formation des particules. Cette fois, après une irradiation de 40 min, des particules allongées et rondes se forment sur la surface irradiée de l'échantillon. La taille moyenne des particules allongées est de 6nm x 11nm et les particules rondes ont un diamètre moyen de 8 nm (fig. 5.24a). Quand le temps d'irradiation augmente jusqu'à 60min, les particules rondes de Co commencent à devenir prépondérantes sur la surface irradiée (fig. 5.24b). Leur diamètre moyen augmente jusqu'à une valeur de 10 nm. En considérant ces particules comme des disques nous avons calculé que la surface qu'elles occupent est d'environ 40% de la surface totale de l'échantillon. La hauteur des ces particules est de 50 Å.

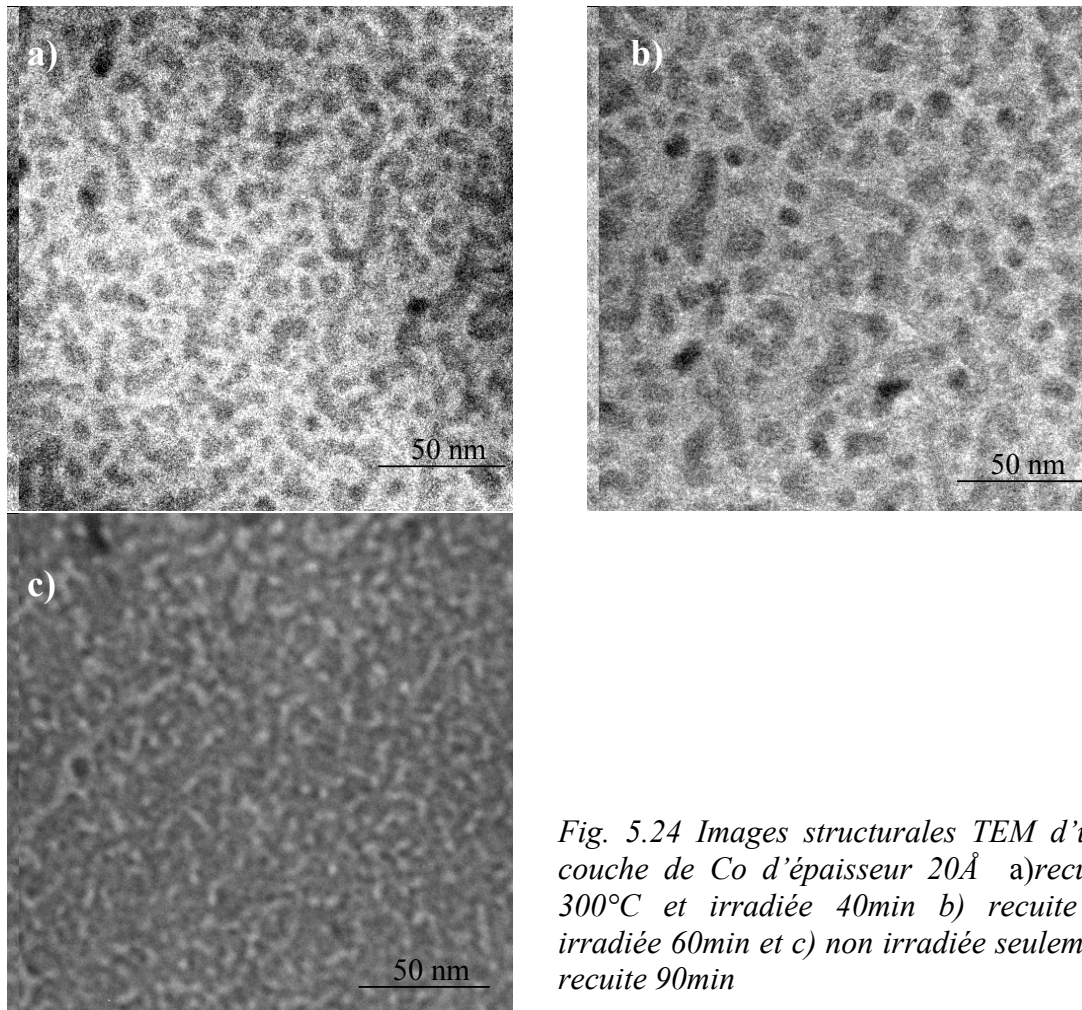


Fig. 5.24 Images structurales TEM d'une couche de Co d'épaisseur 20Å a)recuite 300°C et irradiée 40min b) recuite et irradiée 60min et c) non irradiée seulement recuite 90min

Même si les conditions ont été les mêmes que pour la couche de 10Å de Co, il apparaît clairement que pour une couche plus épaisse, la coalescence a été plus facile. Ceci peut s'expliquer par le fait que pour une couche plus épaisse l'énergie de surface est plus importante ce qui facilite la coalescence. Mais si la couche devient trop épaisse la coalescence sera plus difficile à cause du fait que le faisceau d'électrons ne va plus réussir à créer des défauts sur toute l'épaisseur de la couche.

Dans le cas de la couche de 20Å de Co, si on compare l'image prise sur une région qui a été seulement chauffée et on compare avec l'image prise sur la région irradiée et chauffée dans le même temps on peut voir une grande différence dans l'aspect des particules (fig. 5.24c).

Dans la zone irradiée les particules sont mieux définies, elles ont une forme presque ronde. Comme précédemment, dans la zone non-irradiée les particules ont gardé leur forme en labyrinthe.

On peut donc conclure que l'irradiation d'une couche de Co avec un faisceau d'électrons joue un rôle important dans la coalescence d'une couche continue de Co en îlots. Le temps nécessaire pour former les particules à partir d'une couche continue est beaucoup plus important que celui nécessaire dans le cas d'une couche discontinue.

Nous avons réalisé des essais d'irradiation d'une couche continue de Co déposée sur SiO₂ avec un faisceau d'électrons provenant d'un MEB, U= 20KV, faisceau qui permet une meilleur focalisation. Même si les temps d'irradiation ont été les mêmes et parfois supérieurs (le temps maximal d'irradiation a été de 2 heures) on n'a pas réussi à faire coalescer le Co. Il faut noter qu'on n'a pas disposé de porte échantillons chauffant et que le faisceau d'électrons de MEB a une énergie qui est plus faible que celle d'un TEM.

5.5. Conclusions

Nous avons montré qu'il était possible de former des petites particules à partir d'une couche de Co discontinue et aussi continue sous l'effet simultané de l'irradiation et du chauffage in- situ.

Les conditions optimales de dépôt du Co sur un substrat de SiO₂ et SiN ont été déterminées, au début de ce chapitre. Une température de dépôt de -120°C nous a permis d'obtenir une couche présentant un comportement ferromagnétique prépondérant, ce qui suggère que la couche est continue. Le recuit de ces couches à des températures qui varient entre 300°C et 500°C, conduit à une réduction et dans certains cas à la disparition du comportement ferromagnétique, effet attribué à une coalescence des couches en îlots.

La formation des particules à partir d'une couche discontinue, qui est irradiée et chauffée simultanément à 300°C, apparaît assez rapidement. Après une irradiation d'environ 8 minutes les particules de Co ont une forme allongée et elles sont encore liées les unes avec les autres. Quand le temps d'irradiation est de 12 minutes les particules commencent à se disloquer en augmentant la surface libre qui les sépare. La taille moyenne des particules est de 6 nm mais elle augmente avec le temps d'irradiation et après un temps d'irradiation de 2 heures elle est de 16 nm. En comparant une zone irradiée et chauffée avec une zone qui a été seulement chauffée, on a montré que l'irradiation avec le faisceau d'électrons joue un rôle primordial dans la formation de ces particules. Toutefois le chauffage in-situ accélère la cinétique de coalescence ce qui montre que ce phénomène est activé thermiquement.

L'irradiation d'une couche continue de Co déposée à basse température sur un substrat de SiN s'est avérée elle aussi assez difficile. Après une irradiation de 40 min et un chauffage à 300°C la couche commence à se scinder. Des particules rondes de diamètre moyen de 10 nm apparaissent après une irradiation de 60 min.

Cette méthode permet, par la focalisation du faisceau d'électrons, de former des particules de petite taille, localement. La position des particules peut être contrôlée en laissant le faisceau d'électrons fixe et déplaçant l'échantillon.

Malheureusement cette méthode de préparation des petites particules présente un désavantage important. Le processus est assez long.

Une autre possibilité pour contrôler la position des particules est de réaliser l'irradiation avec un faisceau d'électrons qui provient d'un MEB. Nous avons réalisé des essais mais on n'a pas réussi à scinder la couche et à former des particules. Il faut noter qu'on n'a pas disposé d'un MEB avec un porte-échantillon chauffant donc les échantillons n'ont pas été chauffés mais seulement irradiés.

Références bibliographiques du chapitre 5:

- [Bardou_96] N. Bardou, B. Bartenlian, F. Rousseaux, J. Magn. Magn. Mater. **156**, 139 (1996)
- [Baltz_04] V. Baltz, J. Sort, B. Rodmacq, B. Dieny, S. Landis, Appl. Phys. Lett. **84**, 4923 (2004)
- [Bessho_96] K. Bessho, Y. Iwasaki, S. Hashimoto, J. Appl. Phys, **79**, 5057 (1996)
- [Chatain_86] D. Chatain, J. Chim.Phys., **83**(9),561 (1986)
- [Cowburn_99] R.P. Cowburn, D.K. Koltsov, A. O. Adeyeye, M. E. Welland, Phys. Rev. Lett. **83**, 1042 (1999)
- [Dieny_97] B. Dieny, S. Sankar, M.R.McCartney, D.J. Smith J. Magn. Magn. Matt., **185**, 283 (1997)
- [Ferrari_97] E.F. Ferrari, F.C. da Silva, M. Knobel, Phys. Rev. B, **56**, no 10, 6086 (1997)
- [Gautier_94] M. Gautier, J.Phys.3 France 4, 1779-1794, (1994)
- [Glaczynska_03] H. Glaczynska, U. Ebels, J. Rybczynski, W. Kandulski, M. Giersig, Acta Physica Polonica A104, 3 (2003)
- [Gregg_94] J. F. Gregg, S.M. Thompson, S.J. Dawson, K. Ounadjela, C. R. Staddon, J. Hamman, C. Fermon, G. Saux, K. O'Grady, Phys. Rev. B, **49**, 1064 (1994)
- [Hehn_96] M. Hehn, K. Ounadjela, J. Bucher, C. Chappert, Science **272**, 1782 (1996)
- [Hillebrands_97] B. Hillebrands, C. Mathieu, C. Hartmann, M. Bauer, J. Magn. Magn. Mater **175**, 10 (1997)
- [Hu_95] W. Hu, J. Wong, C.C.Cheng, R. Johnson, J. Vac. Sci.Technol. B, **13**, 2372 (1995)
- [Hubert_98] A. Hubert, R. Schafer, « Magnetic domains », Ed.Springer, (1998)
- [Jorritsma_98] J. Jorritsma, J.A. Mydosh, J. Appl. Phys. **84**, 901 (1998)

- [Luis_02] F. Luis, J.M. Torres, L.M. Garcia, J. Bartolome, J. Stankiewicz, F. Petroff, F. Fettar, Phys. Rev. B, **65**, 094409 (2002)
- [Micha_02] J.S. Micha, « Etude structural et morphologique de multicouches discontinue metal-oxyde », thèse Univ. J. Fourier, Grenoble (2002)
- [Miramond_97] C. Miramond, C. Fermon, F. Rousseaux, J. Magn. Magn. Mater. **165**, 500 (1997)
- [Noguera_96] C. Noguera, « Physics and Chemistry at oxides Interfaces », Cambridge Univ. Press (1996)
- [Rybczynski_03] J. Rybczynski, U. Ebels, M. Giersig, Colloids and surfaces, **219**, 1, (2003)
- [Rousseaux_95] F. Rousseaux, D. Decanini, F. Carcenac, E. Cambril, M.F. Ravet, C. Chapert, N. Bardou, J. Vac. Sci. Technol. B **13**, 2787 (1995)
- [Schaub_92] T. Schaub, R. Wiesendanger, H.J. Guntherodt, Nanotechnology **3**, 77 (1992)
- [Shinjo_98] T. Shinjo, T. Ono, J. Magn. Mag. Mat. **31**, 177 (1998)
- [Streblechenko_98] D. Streblechenko, M.R. Scheinfein, J. Vac.Sci. Technol. A, **16**, 1374 (1998)
- [Viegas_97] A.D.C. Viegas, J. Geshev, L.S. Domeles, J.E. Schmidt, M. Knobel, J. Appl. Phys, **82** (6), 3047 (1997)

Chapitre 6 :

Fils électrodéposés de Co, caractérisation magnétique et structurale

6.1. Introduction.....	147
6.2. Description du système étudié.....	148
6.3. Interaction dipolaire entre les fils dans la membrane.....	150
6.4. L'influence du diamètre de fils sur leurs propriétés.....	152
6.4.1 Etude TEM.....	153
6.4.2 Etude MFM.....	161
6.4.3 Mesures AMR sur des fils de 60 nm diamètre.....	164
6.5 L'influence du pH de la solution électrolytique	167
6.5.1 Caractérisation VSM.....	171
6.5.2 Caractérisation RFM.....	174
6.5.3 Caractérisation MFM.....	176
6.6 L'influence du courant de dépôt	176
6.6.1 Caractérisation RFM.....	176
6.6.2 Caractérisation TEM.....	177
6.6.3 Caractérisation VSM.....	180
6.7. Conclusions.....	184
Perspectives.....	185
Références bibliographiques du chapitre.....	187

6.1. Introduction

Les nanofils constituent un élément central dans le groupe des nanostructures à cause de leurs possibles applications techniques dans la fabrication des composants optiques et électroniques [Boustimi_03], dans l'enregistrement magnétique de grande densité ou dans le domaine des biotechnologies [Niemeyer_01] [Nogales_00].

En même temps, ils représentent un système d'étude qui peut nous offrir une meilleure compréhension des phénomènes physiques qui apparaissent dans des systèmes de taille réduite.

Dans le cadre très large des nanofils, les nanofils magnétiques ont suscité beaucoup d'intérêt dans les dernières années. Leur étude a permis de mettre en évidence des propriétés magnétiques et de transport intéressantes comme par exemple : la magnétorésistance géant [Piroux_97], le renversement de l'aimantation dans un fil isolé [Vila_02], la magnétorésistance de parois de domaines [Ebels_00], le transport de spin dans des nanoconstrictions [Elhoussine_02].

Notre étude est consacrée aux fils magnétiques, obtenus par l'électrodéposition du Co dans des membranes polycarbonées. La préparation des fils et toutes les études RFM ont été réalisées par le groupe du prof. L. Piroux du Laboratoire PCPM, Louvain.

Le but de cette étude a été de mettre en évidence la possibilité de contrôler les propriétés structurales et magnétiques des fils, en jouant sur différents paramètres de préparation tels que: le diamètre des pores, le pH de la solution électrolytique, le courant de dépôt. L'étude est motivée par le fait que de nombreuses applications techniques demandent des fils homogènes, avec l'aimantation orientée le long du fil, orientation qui est stabilisée pour une croissance du Co avec une structure hcp uniaxiale, l'axe c étant parallèle à l'axe du fil. Parmi ces applications il y a : les applications hyperfréquence où un axe c parallèle au fil constitue un moyen d'augmenter le champ effectif et avec cela les fréquences de résonance, l'enregistrement magnétique, l'utilisation des fils comme des pointes MFM [Garcia_02].

L'étude que j'ai menée consiste en une caractérisation structurale et magnétique des fils de Co avec l'aide du TEM, VSM et MFM.

6.2. La description du système étudié

Au fil des années plusieurs méthodes d'élaboration de nanofils ont été développées comme par exemple : la nanolithographie [Matsui_00], l'électrodéposition dans des membranes d'alumine [Kawai_76][Arai_89] ou dans des membranes polycarbonées.

L'électrodéposition est une méthode qui permet d'obtenir très facilement des fils de différents diamètres et d'une très bonne qualité. Les fils peuvent être fabriqués à partir des différents matériaux: métaux (Co, Ni, Fe), semiconducteurs [Lakshmi_97], supraconducteurs [Piroux_04] ou polymères conducteurs [Wu_94].

Le système étudié dans ce chapitre est constitué de fils de Co ayant un diamètre qui varie entre 18 nm et 70 nm et une longueur de maximum 22 μm . Les fils ont été fabriqués par électrodéposition du Co dans une membrane polycarbonée, méthode décrite dans le chapitre 2 de cette thèse.

Une image topographique obtenue avec un microscope AFM de trois fils de Co de 40 nm de diamètre, est présentée sur la fig. 6.1.

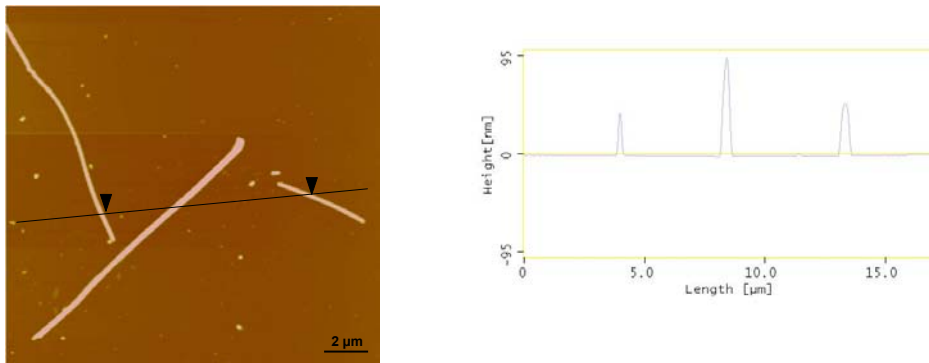


Fig. 6.1 Image AFM d'un système de fils de Co de 40 nm de diamètre après la dissolution de la membrane polycarbonée

Les études précédentes [Henry_01] [Ferré_97], se sont concentrées sur des fils électrodéposés de Co et également de Ni. Leur diamètre varie dans une gamme assez large, entre 30 nm et 500 nm.

Les fils de Ni sont caractérisés par une anisotropie magnéto- cristalline qui est très faible. Leur aimantation s'aligne le long du fil, cette préférence étant déterminée par la présence d'un autre type d'anisotropie dans les fils : l'anisotropie de forme. L'anisotropie de forme apparaît dans les fils à cause de leur forme allongée, et elle devient de plus en plus importante si le rapport longueur du fil sur diamètre augmente en s'approchant de la valeur

qui caractérise un cylindre infini $\pi \cdot M_s^2$. Cette anisotropie favorise l'alignement de l'aimantation le long de l'axe du fil.

Dans le cas des fils de Co de structure hcp, des mesures de couple ont mis en évidence l'existence d'une anisotropie magnéto- cristalline assez importante. Donc l'anisotropie totale comporte deux composantes: l'anisotropie magnéto- cristalline et l'anisotropie de forme. Les premières études semblaient indiquer qu'en fonction du diamètre du fil, l'anisotropie magnéto- cristalline a des valeurs différentes et veut aligner l'aimantation parallèlement ou perpendiculairement à l'axe du fil [Henry_01] (fig. 6.2).

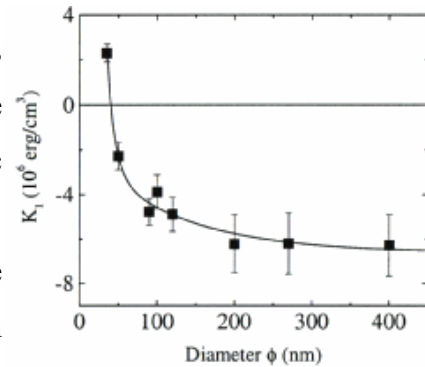


Fig. 6.2 La variation de la constante d'anisotropie avec le diamètre des fils [Henry_01]

Les études sur les fils de Co ayant des diamètres inférieurs à 35 nm ont montré que l'axe c est orienté parallèlement à l'axe du fil. Dans ce cas l'anisotropie magnéto- cristalline va renforcer l'effet de l'anisotropie de forme. Les études MFM ont mis en évidence dans ces fils la présence de plusieurs domaines où l'aimantation est parallèle à l'axe du fil [Henry_01].

Quand le diamètre augmente jusqu'à des valeurs supérieures à 100 nm, les fils présentent une très forte anisotropie magnéto- cristalline perpendiculaire au fil. Cette anisotropie est du même ordre que l'anisotropie de forme $\left(K_u = 6 \cdot 10^6 \frac{\text{erg}}{\text{cm}^3}, K_d = 6.2 \cdot 10^6 \frac{\text{erg}}{\text{cm}^3} \right)$ [Henry_01]. Dans ce cas une orientation de l'aimantation perpendiculaire à l'axe du fil devient possible. L'étude MFM a montré une structure magnétique plus complexe, les fils présentant des domaines en bande avec l'aimantation orientée transversalement au fil [Henry_01].

Dans le cadre de cette thèse, une étude structurale et magnétique plus fine de ces fils de Co a été effectuée. Cette étude a mis en évidence que ce n'est pas le diamètre qui contrôle l'orientation de l'axe c dans les fils. Nous allons étudier systématiquement plusieurs paramètres liés au processus de préparation des fils qui n'ont pas été pris en compte dans les études précédentes et qui jouent un rôle très important dans les propriétés structurales et magnétiques des fils.

L'analyse magnétique de ces fils a été réalisée par des études RFM et VSM. Ces mesures sont effectuées sur l'ensemble des fils dans la membrane.

L'analyse du comportement magnétique et structural d'un fil isolé avec le MFM et le TEM a été possible par la dissolution de la membrane dans une solution de dichlorométhane suivie par la dispersion des fils sur un substrat de Si ou sur une grille de SiN.

6.3. Interaction dipolaire entre les fils dans la membrane

Cette étude est motivée par la nécessité de connaître l'intensité des interactions dipolaires entre les fils dans la membrane. Cela est très important pour interpréter les mesures VSM qui sont réalisées sur l'ensemble des fils dans la membrane car des fortes interactions dipolaires peuvent conduire à des changements du comportement magnétique des fils.

Afin de déterminer le champ dipolaire nous avons considéré les fils comme des parallélépipèdes de taille $2a$ dans la direction x , b dans la direction y et $2c$ dans la direction z , avec l'aimantation orienté suivant l'axe x ou z (Annexe 1). Cette approche pour décrire les fils a été choisie parce que le code existait déjà, il était écrit à l'origine pour décrire le comportement magnétique des plots carrés étudiés dans le chapitre 4.

Dans notre calcul deux situations sont considérées:

- a) l'aimantation dans les fils est orientée perpendiculairement à l'axe du fil et
- b) l'aimantation est orientée parallèlement à l'axe du fil.

a) En considérant la séparation entre les parallélépipèdes suivant la direction x et y étant « s », le nombre des parallélépipèdes suivant x et suivant y étant $N=M=2000$, et la taille des parallélépipèdes est $2a$ suivant x et y et très grande suivant z ($2c=100*2a$), on obtient un système de fils dont l'aimantation est orientée perpendiculairement à l'axe du fil.

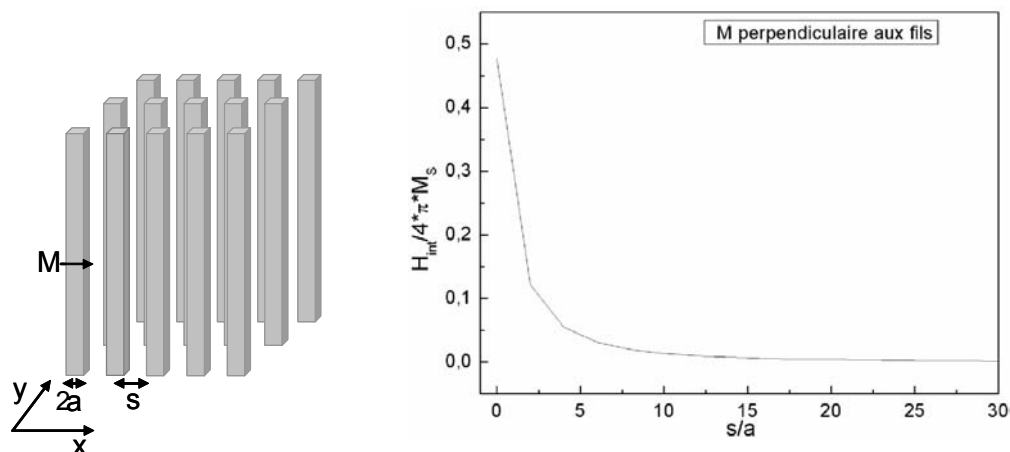


Fig.6.3 La variation du champ d'interaction dipolaire en fonction du rapport s/a

Des informations plus détaillées sur le déroulement du calcul sont présentées dans l'annexe 1. La dépendance du champ d'interaction dipolaire $H_{\text{int}}/4 \cdot \pi \cdot M_s$ en fonction du rapport s/a est présentée sur la figure 6.3. On peut remarquer la diminution de la valeur du champ avec l'augmentation de la séparation entre les fils.

b) Le deuxième cas considéré dans notre calcul est le cas où l'aimantation des fils est parallèle à l'axe du fil.

Dans cette situation on considère la séparation « s » entre parallélépipèdes suivant la direction x et y . On suppose que suivant la direction x et y on a $N=M=2000$ parallélépipèdes. La taille du parallélépipède suivant la direction x et y est de $2a$ et suivant z est $2c=100 \cdot 2a$. Le résultat de la simulation nous montre que le champ d'interaction dipolaire diminue toujours avec l'augmentation de la séparation entre les fils (fig. 6.4).

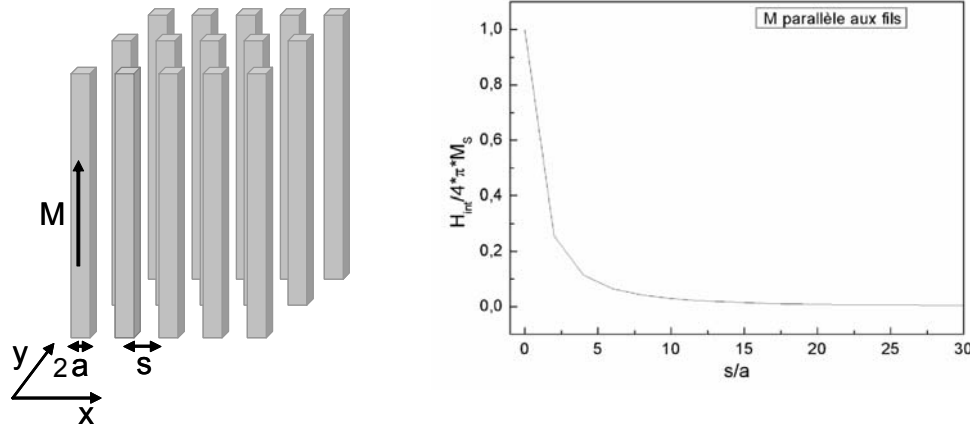


Fig. 6.4 La variation du champ d'interaction dipolaire en fonction du rapport s/a

Dans le cas de nos fils, on connaît la valeur de la porosité P de la membrane. La

porosité est définie par : $P = \frac{\Phi^2}{\langle d \rangle^2}$ où $\Phi = 2 \cdot a$ est la taille des fils. La valeur d s'écrit :

$d = s + \Phi$ où s est l'espacement moyen entre les fils. La plupart des membranes qui ont été utilisées pour la préparation des fils ont une porosité qui est inférieure à 4%. Cette valeur conduit à un rapport $\frac{s}{a}$ d'environ 8.

Quand l'aimantation est orientée suivant l'axe du fil (fig. 6.4), à cette valeur pour le rapport $\frac{s}{a}$ correspond une valeur du champ d'interaction $H_{\text{int}}/4 \cdot \pi \cdot M_s = 0.04$, qui conduit à une valeur $H_{\text{int}}^{\parallel} = 703 \text{Oe}$.

Quand l'aimantation est perpendiculaire à l'axe du fil, $H_{\text{int}}/4 \cdot \pi \cdot M_s = 0.02$, d'où on obtient la valeur $H_{\text{int}}^{\perp} = 315 \text{Oe}$.

La situation où l'aimantation est orientée suivant l'axe du fil est celle qu'on retrouve dans notre système de fils donc on s'attend à une valeur du champ d'interaction dipolaire important ce qui fait que l'interaction magnétostatique entre les fils dans la membrane ne peut pas être considéré comme négligeable pour une porosité de la membrane d'environ 4%.

Jusqu'à présent nous avons considéré la situation idéale où tous les fils sont disposés uniformément dans la membrane et sont séparés par la même distance. Dans le cas réel, les fils ne sont pas disposés uniformément. Il y a des régions où les fils sont plus agglomérés. Donc même si la valeur moyenne de la porosité reste de 4%, il faut s'attendre à une interaction dipolaire locale entre les fils qui peut être beaucoup plus importante.

6.4 L'influence du diamètre des fils sur leurs propriétés

Comme nous l'avons mentionné dans le deuxième paragraphe de ce chapitre, les études antérieures [Henry_01] réalisées sur des fils de Co de diamètre compris entre 30 nm et 450 nm semblent indiquer que le diamètre des fils influence l'orientation de l'axe c. Des études RFM plus récentes [Darques_04] contredisent cette conclusion et montrent que le diamètre n'influence pas l'orientation de l'axe c. Afin de clarifier ce problème nous avons mené des études sur des fils de Co de diamètre qui varie entre 18 nm et 60 nm.

L'étude de l'influence du diamètre sur les propriétés magnétiques et structurales a été réalisée sur des fils de cobalt préparés à potentiel constant ($\sim 0.95 \text{V}$) et à un pH de 3.9. Le diamètre des pores dans la membrane varie entre 18 nm et 60 nm. Des études AFM/MFM et TEM ont été réalisées sur des fils isolés de la membrane.

6.4.1 Etude TEM

a) Les fils de 18 nm

Le plus petit diamètre des fils pour lesquels nous avons réalisé une caractérisation structurale avec le microscope électronique par transmission (TEM) est de 18 nm.

L'analyse de 5 différents fils a mis en évidence une variation du diamètre, d'un fil à l'autre. La valeur moyenne du diamètre étant de $18 \pm 2 \text{ nm}$. Cette variation a été observée pour des fils provenant de la même membrane et elle est donnée par la distribution des diamètres des pores dans la membrane. Dans la détermination du diamètre des fils on n'a pas pris en considération la largeur de la couche qui entour le fil et qui donne un contraste moins fort. Cette couche a une épaisseur moyenne de $e = 4 \text{ nm}$ et elle est attribuée à une couche de membrane qui est restée autour de fil et à laquelle s'ajoute une couche d'oxyde de Co obtenue par l'oxydation naturelle du fil de Co dans le temps écoulé entre la préparation et l'analyse.

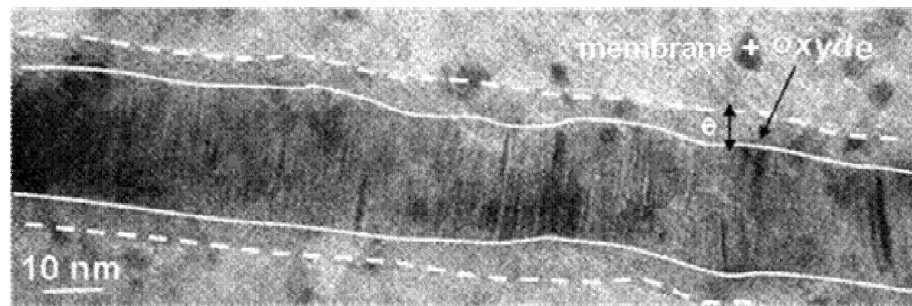


Fig. 6.5 Image TEM d'un fil de 22 nm de diamètre qui montre la présence d'une couche d'oxyde

Elle est bien visible sur une section d'un fil, de longueur 160 nm, présentée sur la fig.6.5. Cette figure nous montre que le diamètre du fil varie d'environ 10% le long du fil.

Afin d'avoir plusieurs informations sur la structure cristalline du fil, des images de haute résolution ont été réalisées.

Sur la fig.6.6 une image TEM d'haute résolution, représente une partie de 20 nm de longueur, d'un fil de Co de 22 nm de diamètre. Comme le montre cette image, le fil est composé de beaucoup de petits grains qui sont entourés sur l'image par une ligne pointillée. Ils ont une forme allongée avec une longueur qui varie entre 10 nm et 15 nm et un diamètre d'environ 5 nm. Le grand axe des grains est orienté aléatoirement.

Afin de trouver l'orientation de l'axe c, des images de diffraction ont été réalisées sur chaque grain, en faisant la transformée de Fourier des images de haute résolution. Pour ceci

nous avons utilisé le logiciel « SCION IMAGE »¹. Les distances et les angles entre les spots qui apparaissent sur l'image de diffraction sont comparés avec les valeurs calculées théoriquement, qui sont présentés dans l'annexe 2. A partir de cette comparaison on détermine l'orientation de l'axe c.

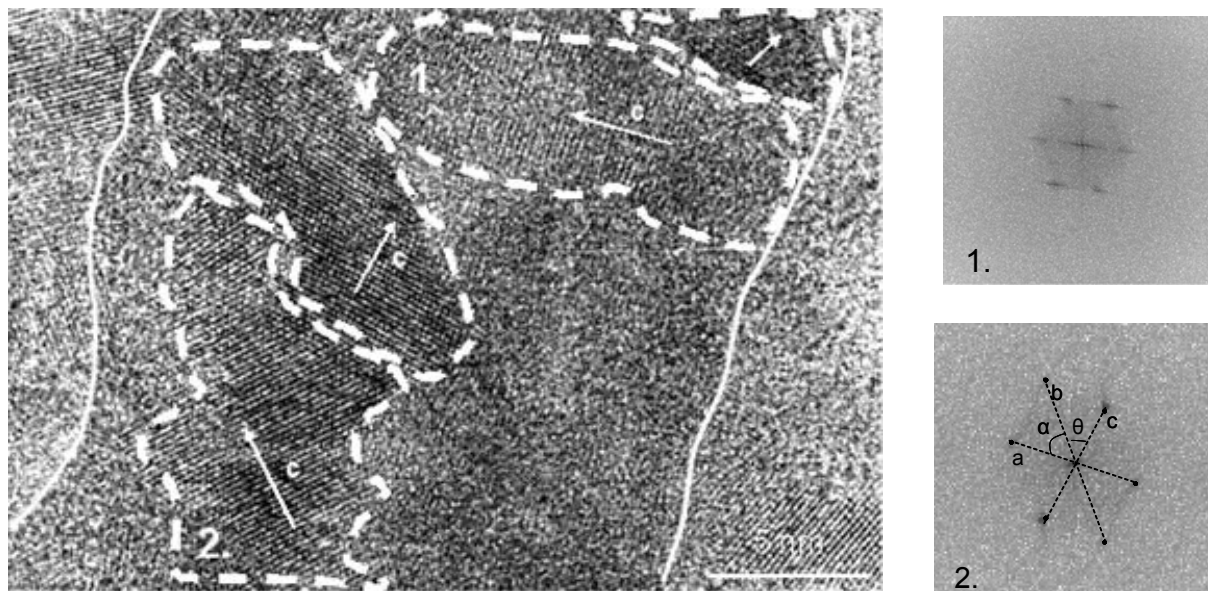


Fig. 6.6 Image de haute résolution pour un fil de 22 nm qui montre la présence de plusieurs grains. Les images de diffractions de deux grains sont montrés sur la même image : l'image de diffraction 1 est caractérisée par les paramètres $b/a=1.07$ et $\alpha=65^\circ$, $\theta=55^\circ$; l'image de diffraction 2 a pour paramètres $b/a=1.25$ et $\alpha=\theta=47^\circ$

Ces axes c sont perpendiculaires aux plans atomiques qui sont visible à l'intérieur des grains (les lignes parallèles).

Les images de diffractions montrent que l'axe c est incliné par rapport à l'axe du fil avec différents angles. Dans le cas des grains présentés sur la fig.6.5, cet angle varie entre 15° et 80° .

En conclusion, les fils de diamètre 18 nm sont très inhomogènes. Ils sont constitués de petits grains présentant des orientations aléatoires de l'axe c.

b) Les fils de 23 nm

Le diamètre de ces fils mesuré à partir des images TEM est de $27 \pm 6 \text{ nm}$. Dans le calcul du diamètre on n'a pas pris en considération l'oxyde de Co et la membrane qui entourent le fil et qui ont une largeur d'environ 4 nm.

L'analyse TEM a été effectuée sur 4 fils de longueurs variant entre 300 nm et 1 μm .

¹ <http://www.scioncorp.com>

La fig.6.7 présente une région d'environ 140 nm longueur d'un des fils et l'image de diffraction qui lui correspond. La longueur totale du fil qui a été analysée est de 500 nm. Un zoom sur une partie d'environ 40 nm longueur de cette image a été effectué et est présenté sur la même figure.

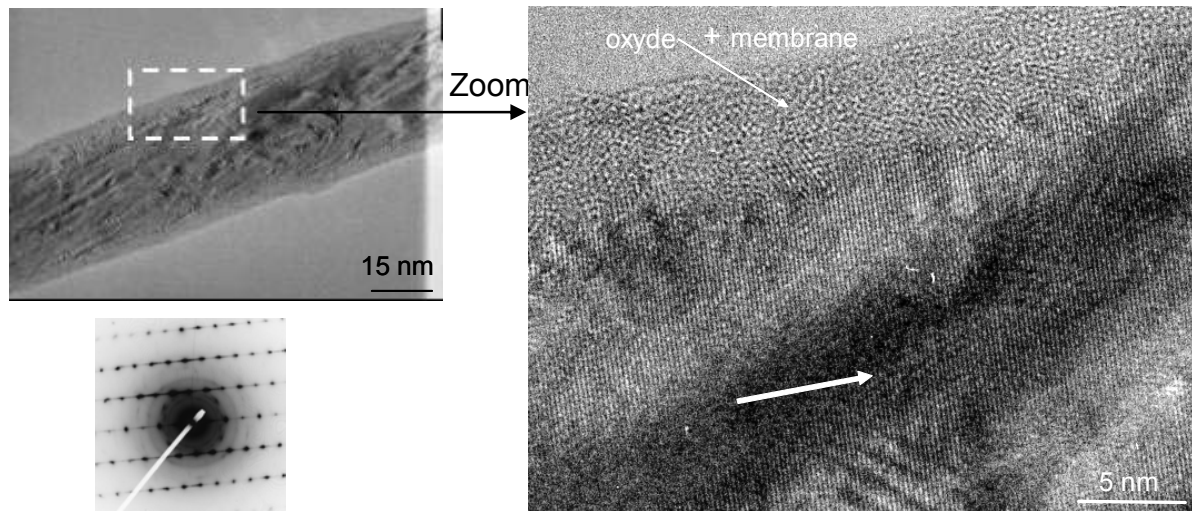


Fig. 6.7 Image de haute résolution d'une région de 140 nm d'un fil de diamètre de 23 nm et un zoom de cette image. L'Image de diffraction qui correspond à cette partie du fil est présentée et elle a les paramètres : $c/a=1.09$, $b/a=1.1$, $\alpha=61^\circ$, $\theta=61^\circ$

L'image de diffraction montre que l'orientation de l'axe c est inclinée par rapport à l'axe du fil avec un angle d'environ 10° . Cette image qui a été réalisée pendant l'analyse TEM sur une région assez grande (140 nm) est une preuve de l'homogénéité du fil, qui ne présente pas de grains avec différentes orientations.

La même orientation de l'axe c est donnée par l'image obtenue par zoom qui montre très clairement les plans atomiques perpendiculaires à l'axe c. Elle est en même temps, une preuve supplémentaire de l'homogénéité du fil.

Parmi les 4 fils analysés, 3 ont la même orientation de l'axe c que le fil précédent (fig. 6.7).

La fig.6.8 montre un autre fil avec son image de diffraction. La comparaison entre l'image de diffraction et l'image de diffraction théorique conduit à la conclusion que l'axe c est perpendiculaire à l'axe du fil.

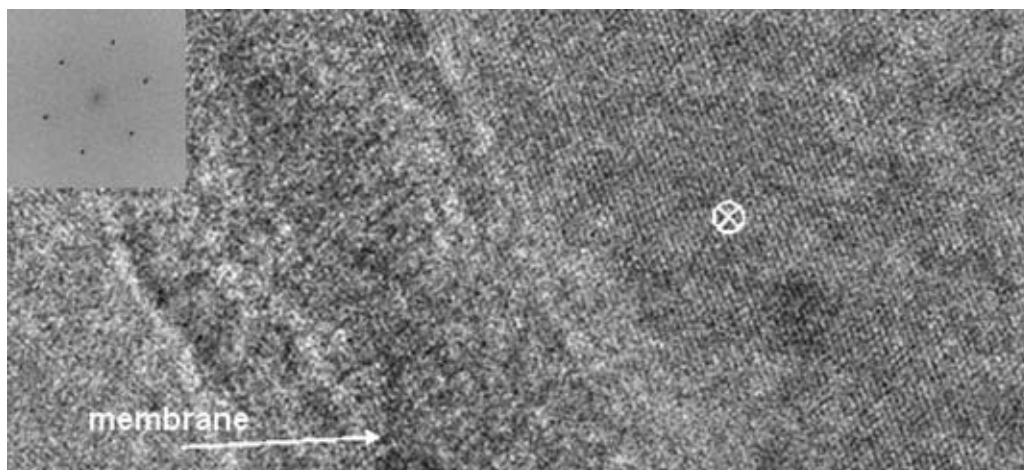


Fig.6.8 Image haute résolution d'un fil de 23 nm avec un axe c qui est perpendiculaire à l'axe du fil et l'image de diffraction ($a=b=c$; $\alpha = \theta = 60^\circ$)

En conclusion, l'analyse des images de haute résolution des fils de 23 nm montre une structure plus homogène sans grains, l'orientation de l'axe c pour un fil donné restant inchangé suivant toute la longueur d'un fil. Par contre l'orientation de l'axe c varie d'un fil à l'autre.

c) Les fils de 29 nm

Nous avons analysé 6 fils en TEM. Le diamètre moyen de ces fils déterminé à partir des images TEM est de $25 \pm 5 \text{ nm}$. L'épaisseur de la couche de membrane et celle de la couche d'oxyde de Co qui entoure les fils a une largeur de 6 nm.

Deux images de haute résolution, représentant des parties de deux fils différents sont présentées sur la fig. 6.9.

La première figure 6.9a, contient une image de haute résolution et une de diffraction. L'image de diffraction a été obtenue par la transformée de Fourier de l'image de haute résolution. La comparaison entre cette image de diffraction et les images théoriques présentées dans l'annexe 2, nous a montré que l'axe c est presque parallèle à l'axe du fil. Il fait un angle d'environ 5° avec l'axe du fil.

L'analyse de l'image de haute résolution nous a permis de mettre en évidence les plans atomiques et la couche d'oxyde de Co qui entoure le fil. Les plans atomiques sont alignés dans une direction perpendiculaire au diamètre du fil et ils sont perpendiculaires à la direction de l'axe c.

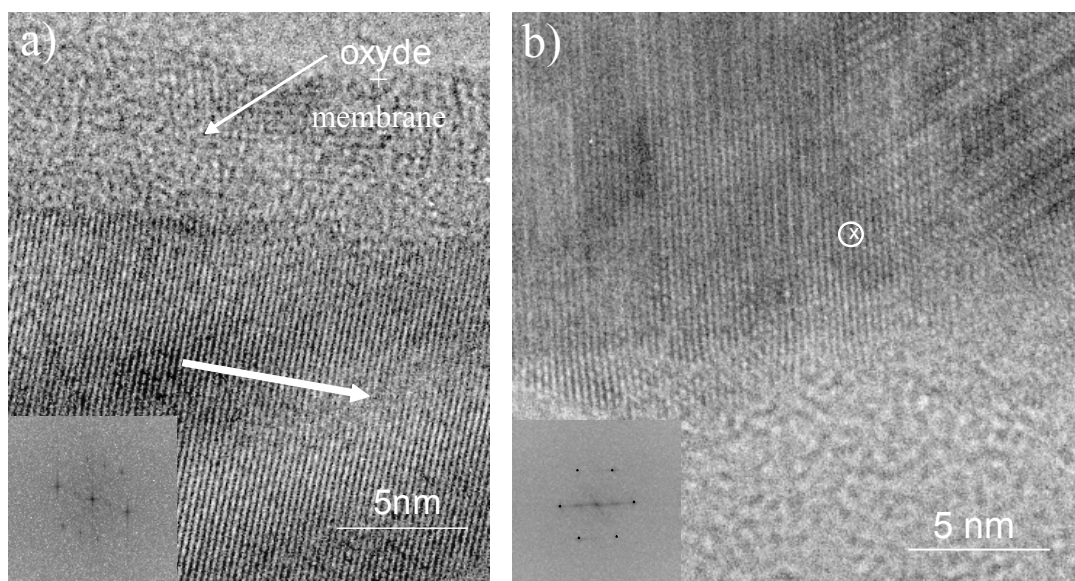


Fig. 6.9 Fil de 29 nm avec : a) l'axe c incliné par rapport à l'axe du fil (les paramètres de l'image de diffraction sont : $c/a=1.09$, $b/a=1.1$, $\alpha=61^\circ$, $\theta=61^\circ$) ; b) l'axe facile perpendiculaire au plan du fil (les paramètres de l'image de diffraction sont : $a=b=c$; $\alpha=\theta=60^\circ$)

Le deuxième fil qui est présenté sur la fig. 6.9b, provient de la même membrane. Par la comparaison entre la transformée de Fourier de l'image de haute résolution, qui est présentée sur la même figure, et les images de diffraction théoriques présentées dans l'annexe 2, nous avons établi que l'axe c est orienté perpendiculairement à l'axe du fil.

Toutes les images de haute résolution réalisées sur ces fils ont montrés que les fils ne contiennent pas de petits grains disposés suivant le diamètre ou suivant la longueur du fil.

En conclusion, l'étude TEM sur les fils de 29 nm nous a permis d'établir que les fils sont très homogènes. L'orientation de l'axe c peut varier d'un fil à l'autre, de parallèle à l'axe du fil en 65% des cas analysés vers une direction perpendiculaire 35%.

d) Les fils de 36 nm

Les fils obtenus à partir des membrane ayant des pores de 36 nm ont un diamètre de $35 \pm 5 \text{ nm}$ selon les mesures TEM. Dans ce calcul on n'a pas pris en considération la largeur de la couche qui entoure les fils et qui est constitué d'une couche d'oxyde de Co à laquelle s'ajoute une couche de membrane. Cette couche n'est présente que pour certains fils et elle a une largeur d'environ 4 nm. Il faut noter que cet échantillon a été analysé en premier peu de temps après le dépôt, donc il a eu un temps plus court pour s'oxyder.

Les fils analysés ont une longueur qui varie entre 280 nm et 1,1 μm et leur diamètre est constant le long du fil. La caractéristique de ces fils est l'homogénéité, ils ne présentent pas des grains suivant le diamètre ou suivant la longueur.

Concernant l'orientation de l'axe c, sur un total de 15 fils analysés, on a trouvé que 26 % ont un axe c parallèle à l'axe du fil. Une partie d'un fil avec l'axe c parallèle à l'axe du fil est représentée sur la fig. 6.10, où on peut voir très clairement l'orientation des plans atomiques. La direction de l'axe c est confirmée par l'image de diffraction.

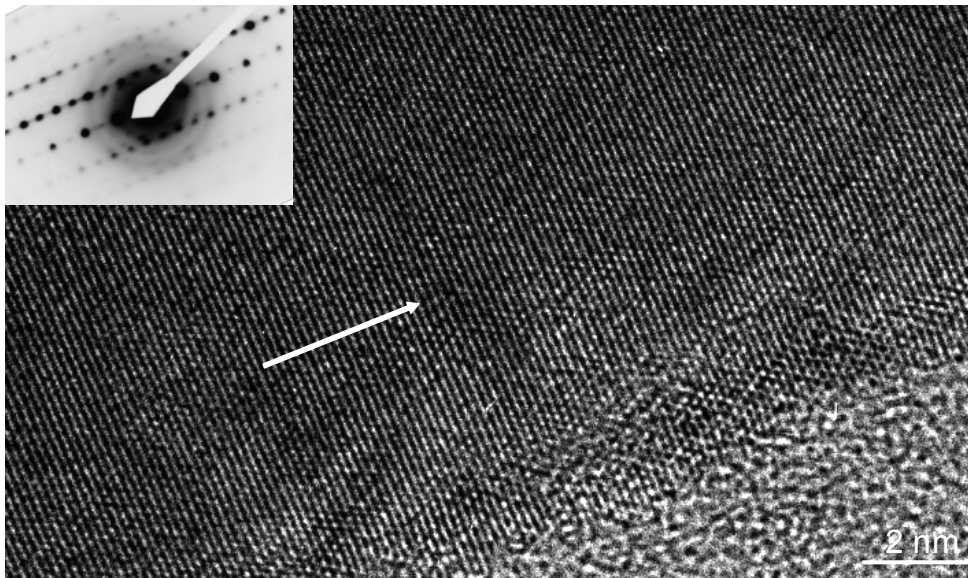


Fig. 6.10 Fil de cobalt de 36 nm diamètre qui montre un axe de facile aimantation parallèle à l'axe du fil (paramètres de l'image de diffraction $c/a=1.09$, $b/a=1.1$, $\alpha=61^\circ$, $\theta=61^\circ$)

Les autres orientations possibles pour l'axe facile qui ont été trouvées sont un axe c incliné par rapport à l'axe du fil dans 40% des cas et perpendiculaire à l'axe du fil dans 34% des fils.

Deux fils différents qui présentent : le premier un axe c qui sort du plan et qui est incliné par rapport à l'axe du fil et le deuxième un axe c perpendiculaire à l'axe du fil sont montrés sur la fig. 6.11.

L'orientation de l'axe c pour les fils présentés dans l'image 6.11a et 6.11b a été déduite par la comparaison entre l'image de diffraction obtenue numériquement (par une transformée de Fourier) à partir de l'image de haute résolution et les images de diffraction calculées théoriquement et présentées dans l'annexe 2.

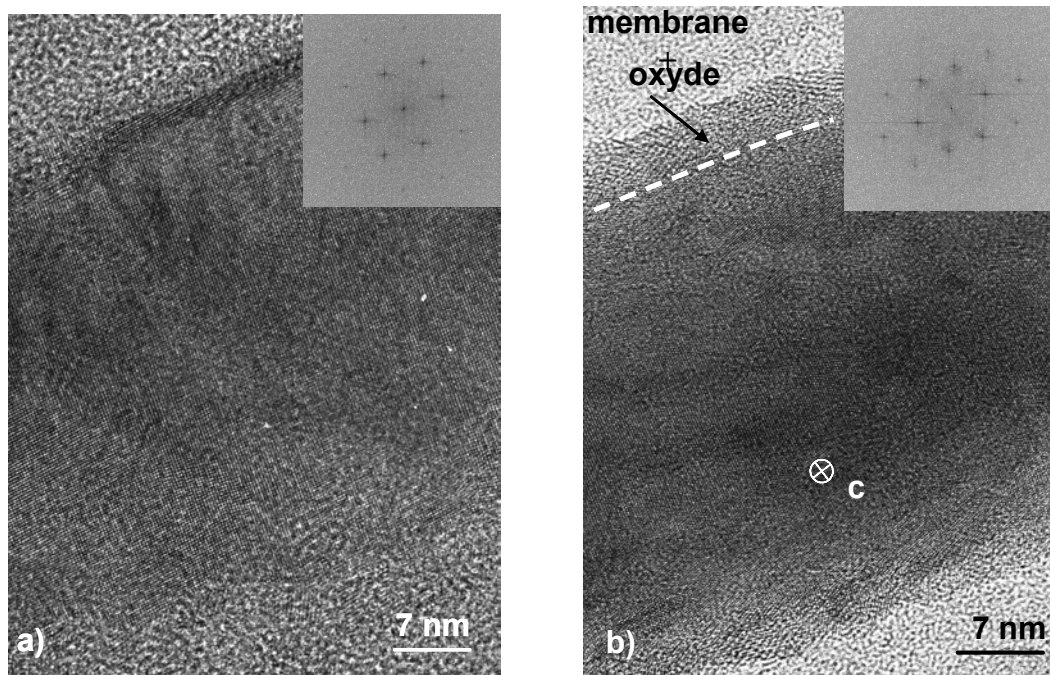


Fig. 6.11 Images de haute résolution et de diffraction de deux fils différents : a) axe c incliné, $b/a=1.215$, $\alpha=50^\circ$, $\theta=81^\circ$, b) axe c perpendiculaire au fil, $b/a=1$, $\alpha=\theta=60^\circ$

En conclusion, comme pour les fils de diamètre plus petit, ces fils sont des fils homogènes et ils n'ont pas une orientation préférentielle de l'axe c, axe qui peut être orienté soit parallèlement à l'axe du fil soit perpendiculairement.

e) Les fils de 60 nm

Nous avons continué notre étude TEM avec des fils de diamètre plus grand : 60 nm. Pour cette valeur du diamètre les études antérieures ont prévu une forte anisotropie magnétocristalline perpendiculaire à l'axe du fil [Henry_01].

Nous avons analysé environ 7 fils en mode de diffraction. Les images de diffraction nous ont montré que dans ces fils l'axe c peut être soit parallèle soit perpendiculaire au fil ou même incliné par rapport à l'axe des fils. De plus, plusieurs orientations de l'axe c sont possibles dans le même fil, comme le montre la figure 6.11a et 6.11b, ce qui est une preuve de l'existence de grains.

Sur la fig. 6.12 sont représentées deux régions provenant de deux fils différents de diamètre 60 nm. La première région a une longueur de 350 nm (fig. 6.12a) et la deuxième de 250 nm (fig. 6.12b). Le diamètre de ces fils est constant le long du fil. La partie analysée du premier fil (fig. 6.12a) présente deux grains avec deux orientations différentes de l'axe c : parallèle à l'axe du fil et perpendiculaire. Dans le cas du deuxième fil, l'axe c est parallèle à l'axe du fil et incliné (fig. 6.12b).

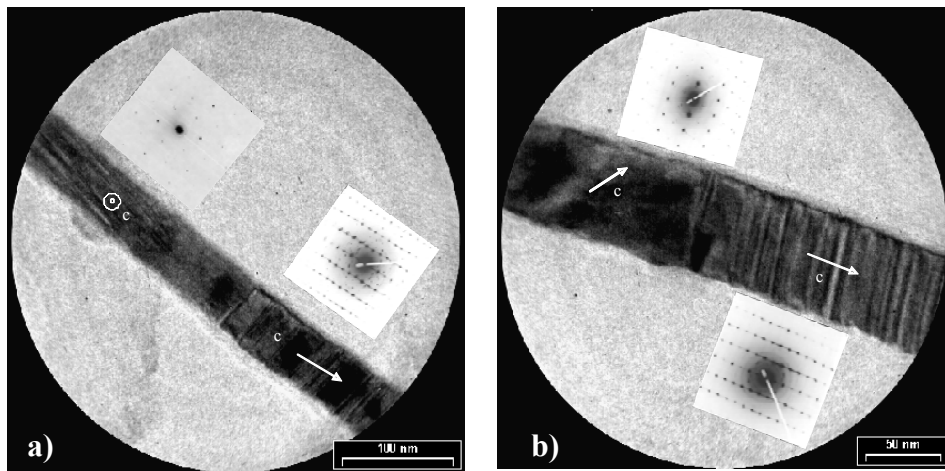


Fig. 6.12 Images de diffraction sur deux fils différents de diamètre 60 nm qui montrent plusieurs orientations possibles de l'axe de facile aimantation

L'orientation inclinée de l'axe c par rapport à l'axe du fil peut être très bien vue sur l'image de haute résolution réalisée sur un troisième fil sur la fig. 6.13.

On voit très clairement les plans atomiques. Comme l'axe de facile aimantation est perpendiculaire aux plans atomiques on peut déterminer ainsi son orientation. L'axe c est incliné avec un angle d'environ 45° par rapport à l'axe du fil. Autour du fil une couche d'oxyde et de membrane d'environ 10 nm a été mise en évidence.

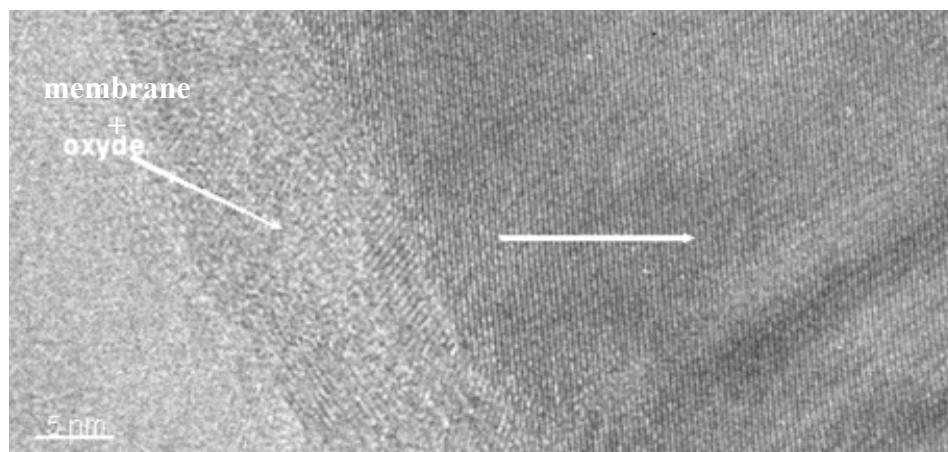


Fig.6.13 Image de haute résolution d'un fil de 60 nm diamètre. La présence de l'oxyde autour du fil est visible dans cette image.

En conclusion les fils de 60 nm diamètre sont constitués de graines avec différentes orientations de l'axe c. Suite aux caractérisations TEM, trois orientations de l'axe c ont été trouvées : parallèle à l'axe du fil, perpendiculaire ou incliné par rapport à l'axe du fil.

Résumé et conclusions

Les informations obtenues après la caractérisation TEM de nos fils de diamètre compris entre 18 nm et 60 nm sont synthétisées dans le tableau suivant :

Diamètre des pores (nm)	Diamètre des fils (nm)	Epaisseur oxyde + membrane (nm)	Taille Grain (nm)	c parallèle à l'axe du fil	c perp à l'axe du fil	c incliné	c// et c \perp dans le même fil	No des fils analysés
18	18 \pm 2	4	~15	X	X	X	X	5
23	27 \pm 6	4	–	X	X	X		4
29	25 \pm 5	6	–	X	X	X		6
36	35 \pm 5	4	–	X	X	X		15
60	60 \pm 2	10	>100	X	X	X	X	7

L'analyse TEM nous permet de conclure qu'en gardant les conditions de préparation des fils identiques, ce n'est pas le diamètre des fils qui contrôle l'orientation de l'axe c.

6.4.2 Etude MFM des fils de 60 nm et 36 nm

Les mesures MFM ont été réalisées sur des fils de diamètre 60 nm et 35 nm provenant de la même membrane que ceux analysés en TEM. Les fils obtenus après dissolution de la membrane ont été déposés sur un substrat de Si afin de réaliser la mesure.

Le protocole de mesure MFM consiste dans la saturation des échantillons dans un champ de 3 kOe appliqué perpendiculairement au plan du substrat, suivi par la mesure dans un champ nul. Toutes les études MFM ont été réalisées avec des pointes aimantées perpendiculairement à la surface de l'échantillon, c'est-à-dire verticalement. De ce fait les images recueillies contiennent en principalement des informations sur la composante verticale du champ de fuite émanant de l'échantillon.

Il est rappelé que le contraste est du soit aux charges de surface soit aux charges de volume. Pour plus de détails voir le chapitre 1.

a) Fils de 60 nm diamètre

Nous présentons d'abord les résultats pour les fils de 60 nm diamètre. La fig.6.14a représente trois fils de longueur variant entre 4 μm et 15 μm . Tous présentent le même type de contraste magnétique : des contrastes noir/blanc le long du fil.

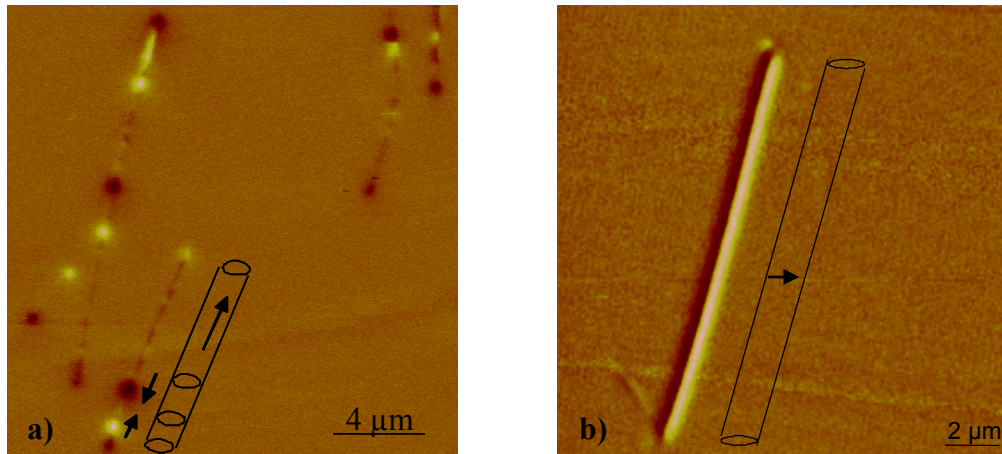


Fig.6.14 Images MFM des fils de diamètre 60 nm qui montrent : a) un fil dont l'aimantation est le long de l'axe du fil ; b) un fil dont l'aimantation est perpendiculaire à l'axe du fil

Ce type de contraste noir/blanc le long des fils qui constitue en effet des accumulations de charges positives (contraste blanc) et négatives (contraste noir) suggère la présence de plusieurs domaines de type tête-bêche avec l'aimantation orientée suivant l'axe du fil. Par exemple le plus long fil de 15 μm est constitué de 4 domaines et la longueur des domaines varie entre 2 μm et 8 μm .

Le fil présenté sur la fig. 6.14b a une longueur de 14 μm et il a un contraste noir blanc, transverse au fil, uniforme sur toute sa longueur. Ce contraste est spécifique à un fil constitué d'un seul domaine magnétique ayant l'aimantation orientée perpendiculairement au fil.

Il y a aussi des situations où le contraste magnétique des fils n'est pas si simple à interpréter. Par exemple sur la fig. 6.15 on retrouve des contrastes qui semblent une superposition des deux contrastes présentés sur la fig.6.14a et 6.14b. Le fil d'une longueur de 15 μm a un contraste noir blanc le long du fil et aussi un contraste noir blanc perpendiculaire au fil.

Ce type de contraste peut être dû à la présence de domaines magnétiques ayant une aimantation inclinée par rapport à l'axe du fil. La taille des domaines magnétiques est de 5

μm . L'absence de contraste au milieu du fil est causée par un défaut qui se trouve à cet endroit sur le fil et qui est visible sur l'image topographique.

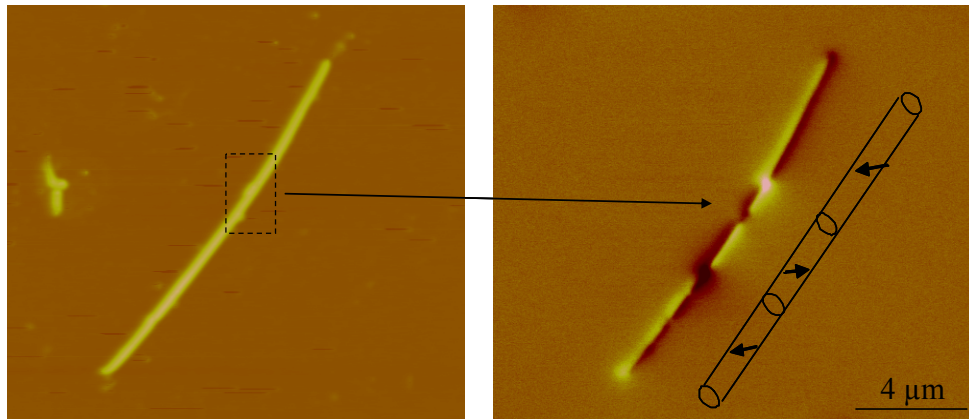


Fig.6.15 Image topographique et magnétique d'un fil de diamètre 60 nm

Le fil présenté sur la fig. 6.16b, d'une longueur de 18 μm a lui aussi plusieurs types de contraste magnétique mélangés : perpendiculaire au fil et incliné par rapport à l'axe du fil.

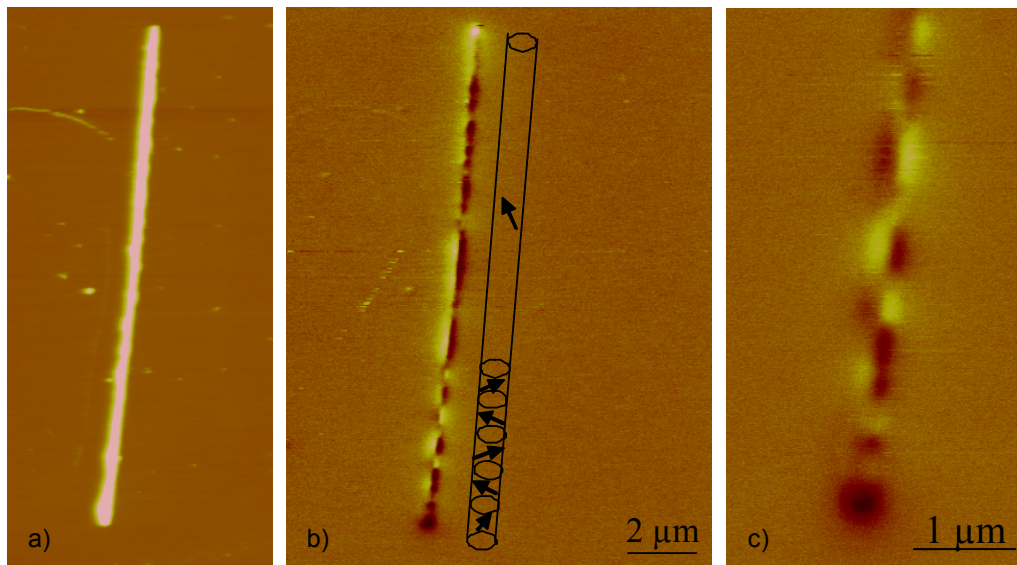


Fig.6.16 a) Image topographique d'un fil de 18 μm de longueur et 60 nm de diamètre, b) image magnétique du même fil et b) zoom de l'image magnétique qui présente des domaines en bande

La particularité de ce fil est le nombre important de domaines magnétiques qu'il présente. Sur une région de 6.4 μm il a 6 domaines, domaines avec une aimantation perpendiculaire au fil en alternance dans les deux directions. Ces domaines en bande ont une largeur qui varie entre 500 nm et 850 nm.

Ce type de contraste a été mis en évidence dans des fils lithographiés de Co pour lesquels il a été montré que la largeur des domaines en bande augmente avec la largeur des fils et dépend aussi de l'histoire magnétique du fil [Prejbeanu_01]

b) Fils de 36 nm diamètre

Le contraste magnétique d'un fil de 36 nm diamètre, présenté sur la fig.6.17, semble provenir de la superposition de deux contrastes : l'un noir-blanc le long du fil et l'autre noir-blanc transversal au fil. Ce fil est composé de deux domaines magnétiques. Le premier domaine a une longueur de 800 nm et l'aimantation est orientée parallèlement à l'axe du fil.

Le deuxième domaine est plus long : 3.2 μm et il présente une aimantation qui semble inclinée par rapport à l'axe du fil.

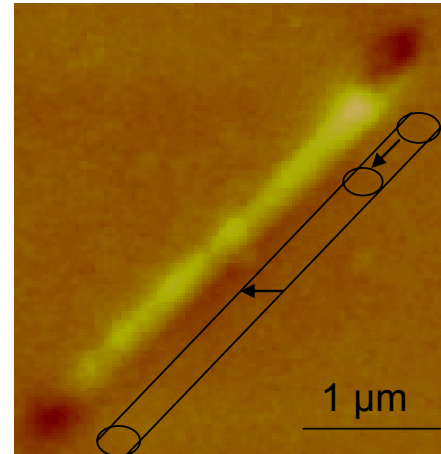


Fig. 6.17 Image magnétique d'un fil de 36 nm qui présente deux domaines magnétiques

Donc les mesures MFM soutiennent les conclusions obtenues après la caractérisation TEM des fils de 60 nm et 36 nm diamètre. Ces fils n'ont pas une orientation préférentielle de l'aimantation. Ils sont divisés en plusieurs domaines où l'aimantation peut s'aligner soit parallèlement à l'axe du fil, soit perpendiculairement à l'axe du fil, soit incliné.

6.4.3 Mesures AMR sur des fils de diamètre 60 nm

Les études TEM et MFM présentés dans les paragraphes précédents ont constitué la base pour comprendre les résultats obtenus par des mesures de magnétorésistance anisotrope (AMR). Ces mesures ont été réalisés par L.Vila (Laboratoire PCPM/ Louvain) qui a réussi à contacter un fil de Co de 60 nm de diamètre [Vila_02a]. Avant de présenter les résultats des mesures, quelques notions de base de AMR sont rappelées.

La magnétorésistance est un effet défini comme la modification de la résistivité électrique d'un matériau sous l'action d'un champ magnétique externe. Afin de mesurer la magnétorésistance, un champ magnétique \vec{H} est appliqué à un fil qui est traversé dans le même temps par un courant électrique de densité \vec{J} .

La magnétorésistance anisotrope s'écrit :

$$AMR(\%) = \frac{\Delta R}{R_0} = \frac{R_{//} - R_{\perp}}{R_0} \quad (6.1)$$

où $R_0 = \frac{R_{//}}{3} + \frac{2 \cdot R_{\perp}}{3}$ est la résistivité en champ nul. (6.2)

En fonction de l'orientation relative du champ magnétique externe par rapport à la direction du courant on a plusieurs effets:

1. *une magnétorésistance longitudinale* : quand le champ magnétique et le courant sont parallèles. Dans cette géométrie la résistance a une valeur maximale en champ nul si l'aimantation est parallèle à la direction du courant (fig. 6.18a).
2. *une magnétorésistance transverse* : quand le champ magnétique est perpendiculaire à la direction du courant. La résistance a une valeur maximale en champ nul si l'aimantation est parallèle à la direction du courant (fig. 6.18b).

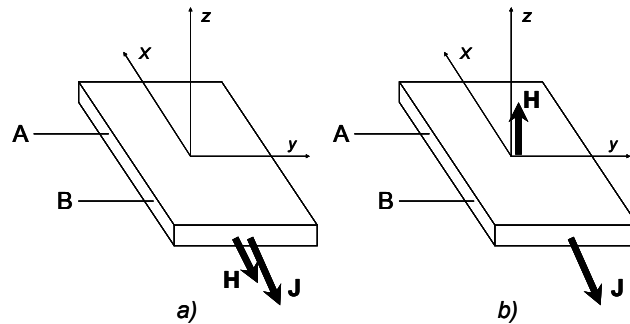


Fig. 6.18 Différentes orientations du champ magnétique externe H par rapport à la direction du courant J permettent la mesure de la : a) magnétorésistance longitudinale et b) magnétorésistance transverse

Après la dissolution de la membrane et le dépôt des fils sur un substrat de Si, un fil isolé a été repéré et contacté. Le nombre de contacts a été de 6, disposés suivant toute la longueur du fil. Ces mesures AMR sont des mesures « locales » qui peuvent nous offrir des informations sur la configuration micromagnétique locale entre deux contacts.

La magnétorésistance longitudinale et transverse des deux segments de ce fil s'est avéré assez intéressante. Le premier segment a une longueur de 5 μm et le deuxième 500 nm (fig. 6.19a).

Quand on compare les courbes obtenues pour les deux segments on observe que pour le segment de 5 μm la variation de la magnétorésistance transverse est beaucoup plus grande que la magnétorésistance longitudinale (fig. 5.19b).

Dans le cas du deuxième segment de 500 nm de longueur, la magnétorésistance longitudinale a une variation plus grande que la magnétorésistance transverse (fig. 6.19c). Le comportement différent de ces deux segments suggère un état rémanent différent dans les deux segments du même fil.

Pour le segment de 5 μm de longueur le fait que la magnétorésistance longitudinale ne varie presque pas indique que l'aimantation dans l'état rémanent est orientée suivant l'axe du fil.

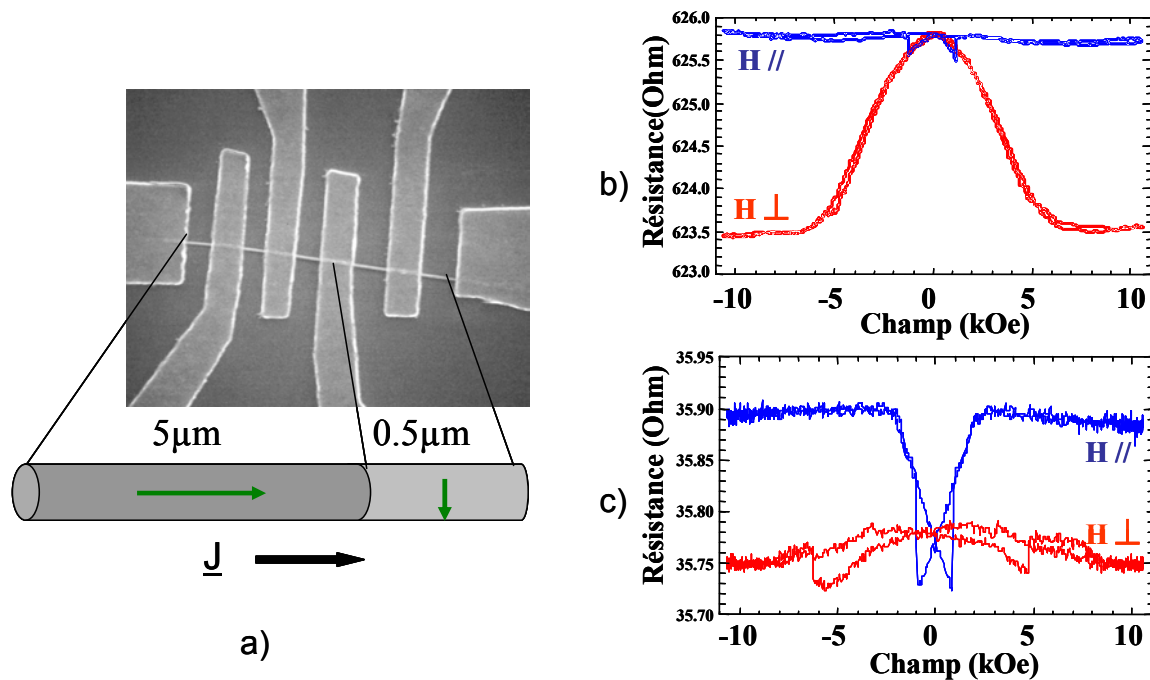


Fig. 6.19a) Image SEM d'un fil de Co de 60 nm diamètre contacté afin de réaliser des mesures de magnétorésistance, b) cycles de magnétorésistance pour le segment de 5 μm , c) cycles de magnétorésistance pour le segment de 500 nm [Vila_02a]

Par contre dans le cas du segment de 500 nm longueur, le comportement de la magnétorésistance suggère une orientation de l'aimantation proche de la direction perpendiculaire à l'axe du fil.

Ces mesures montrent l'existence dans le même fil de deux régions où l'aimantation s'oriente suivant des directions opposées : parallèle et perpendiculaire à l'axe du fil. Ces conclusions sont en concordance avec celles obtenues après des mesures MFM (section 6.4.2 a) et des mesures TEM (section 6.4.1e) réalisées sur des fils de même diamètre (60 nm).

6.5 L'influence du pH de la solution électrolytique

L'influence du pH du bain électrolytique sur la structure du Co électrodéposé a été mise en évidence par plusieurs études antérieures [Nakahara_80] [Tochitskii_95]. Elles ont montré que la phase fcc du Co est favorisée par des valeurs petites du pH (<2.5) et la phase hcp par des valeurs grandes (>3.5).

Concernant l'orientation de l'axe c, une étude menée par Croll sur des couches minces continues, a montré qu'elle est fortement influencée par le pH du bain électrolytique. Pour des pH qui varient dans l'intervalle 4.0-6.5, l'axe c préfère s'orienter hors du plan et pour des petites valeurs du pH ($\text{pH} < 4$) l'axe c est dans le plan [Croll_87].

M. Darques du Laboratoire PCPM/Louvain a repris cette étude pour l'appliquer à la fabrication des nanofils. Il a fait varier le pH dans un intervalle de 2 à 6.4 en gardant le diamètre constant à 29 nm. Les fils ont été préparés à un potentiel constant ($\sim 0.95\text{V}$)

Je vais présenter par la suite les études VSM et MFM faites pour la caractérisation de ces fils afin de déterminer l'influence du pH du bain électrolytique sur ces propriétés.

Des analyses complémentaires RFM de ces fils ont été effectuées par M. Darques au PCPM/Louvain.

6.5.1 Caractérisation VSM

A. Considérations générales

Afin de pouvoir interpréter les mesures VSM, dans la première partie de ce paragraphe nous allons passer en revue le comportement attendu pour le champ coercitif H_c et l'aimantation à la rémanence M_r pour deux orientations possibles de l'axe c.

1. axe c parallèle à l'axe du fil

Dans ce cas l'anisotropie cristalline s'ajoute à l'anisotropie de forme, donc la direction préférentielle de l'aimantation sera le long du fil. Le fil sera caractérisé par une forte anisotropie totale.

a) H_{ext} parallèle à l'axe du fil

Après la saturation du fil suivant une direction parallèle à son axe et en diminuant le champ jusqu'à zéro, l'anisotropie va maintenir l'aimantation le long du fil. On attend des courbes

carrées avec un champ coercitif nécessaire pour renverser l'aimantation dans le fil assez grand et une rémanence grande ($M_r/M_s \sim 1$).

En fonction du diamètre des fils, différents types de renversement peuvent avoir lieu [Ferré_97]. Pour de grands diamètres le renversement peut s'effectuer par nucléation des parois aux extrémités des fils et leur propagation. En diminuant le diamètre le renversement a lieu par rotation cohérente ce qui augmente le H_c .

b) H_{ext} perpendiculaire à l'axe du fil

Dans ce cas une compétition va apparaître entre l'énergie Zeeman qui veut garder l'aimantation perpendiculaire au fil et l'énergie d'anisotropie qui veut aligner l'aimantation parallèlement au fil. Ceci facilite le renversement de l'aimantation par rapport au cas a. La courbe d'hystérésis a une forme de « S » avec un champ coercitif et une rémanence proche de zéro.

2. axe c perpendiculaire à l'axe du fil

Dans ce cas une compétition va apparaître entre l'anisotropie magnéto- cristalline qui veut aligner l'aimantation perpendiculairement à l'axe du fil et l'anisotropie de forme qui veut aligner l'aimantation parallèlement à l'axe du fil. Deux situations peuvent exister dans ce cas :

2.1. l'anisotropie de forme plus forte que l'anisotropie magnéto- cristalline

Si on ne considère pas la formation des domaines, l'aimantation est dans ce cas parallèle à l'axe du fil.

a) H_{ext} parallèle à l'axe du fil

L'énergie d'anisotropie effective a une valeur inférieure à la valeur qu'elle a dans le cas (1a), ce qui conduit à un renversement plus facile. Donc le champ coercitif sera réduit en comparaison avec le cas (1a).

b) H_{ext} perpendiculaire à l'axe du fil

Dans cette situation, l'anisotropie effective étant plus faible par rapport au cas (1b), détermine l'aimantation peut rester bloquée dans une position intermédiaire ce qui conduit à des valeurs faibles du champ coercitif et de valeurs de l'aimantation à la rémanence plus grands que dans le cas 1b.

2.2 l'anisotropie magnéto- cristalline plus forte que l'anisotropie de forme

L'aimantation est dans ce cas perpendiculaire à l'axe du fil.

Si la formation des domaines est favorisée, dans les deux situations : H_{ext} parallèle à l'axe du fil et H_{ext} perpendiculaire à l'axe du fil, des valeurs faibles du champ coercitif et de la rémanence sont attendues.

Si les fils sont monodomaines avec l'aimantation perpendiculaire au fil, en appliquant le champ perpendiculaire au fil on attend un champ coercitif grand et une aimantation à la rémanence importante. Quand le champ est appliqué parallèlement à l'axe du fil le coercitif devient plus faible et la rémanence diminue beaucoup.

B. Résultats

Nous allons continuer maintenant par l'analyse des courbes d'hystérésis mesurées au VSM. Sur la fig. 6.20 nous avons présenté les courbes d'hystérésis obtenues pour trois pH différents 2.0, 4.4 et 6.2 en appliquant le champ externe parallèlement aux fils (fig. 6.20a) et perpendiculairement aux fils (fig. 6.20b). Il faut spécifier que les mesures VSM ont été réalisées sur un ensemble de fils dans la membrane et donc les courbes montrent le comportement magnétique moyen de tous les fils.

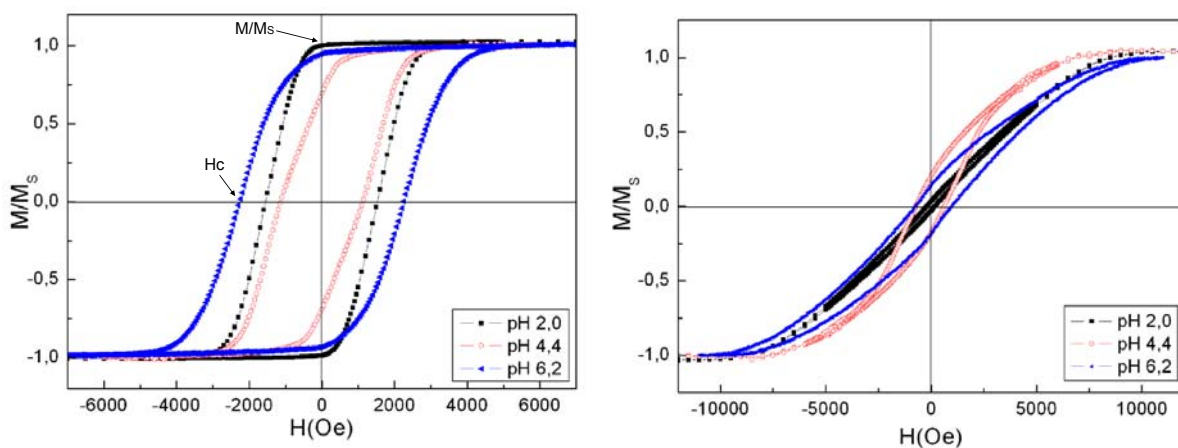


Fig. 6.20 Courbes d'aimantation réalisées sur un ensemble de fils de 29 nm de diamètre pour : a) un champ externe parallèle aux fils et b) un champ externe perpendiculaire aux fils

D'après l'allure des cycles d'aimantation on peut voir que la variation du pH de la solution électrolytique induit des changements dans le comportement magnétique des fils. Afin de mieux comprendre ce changement nous avons représenté la variation du champ coercitif H_c et la variation de la rémanence M_r/M_s en fonction de la variation du pH (fig. 6.21).

Nous avons défini le champ coercitif comme le champ nécessaire pour annuler l'aimantation dans le fil et la rémanence M_r la valeur de l'aimantation du fil dans un champ nul, après la saturation.

Sur ces deux graphes (fig 6.21) nous avons délimité par des lignes pointillées les trois intervalles de pH qui semblent induire des comportements différents. Chaque intervalle sera discuté l'un après l'autre.

Le premier intervalle correspond aux variations de pH entre 2 et 3. Dans ce cas, les courbes d'aimantation obtenues quand le champ externe est appliqué parallèlement aux fils montrent des valeurs de la rémanence normalisée très grandes entre 0.9 et 1 et aussi des champs coercitifs plus grands par rapport aux valeurs obtenues quand le champ externe est appliqué perpendiculairement aux fils. La rémanence normalisée est très petite proche de zéro si on applique le champ externe perpendiculairement aux fils.

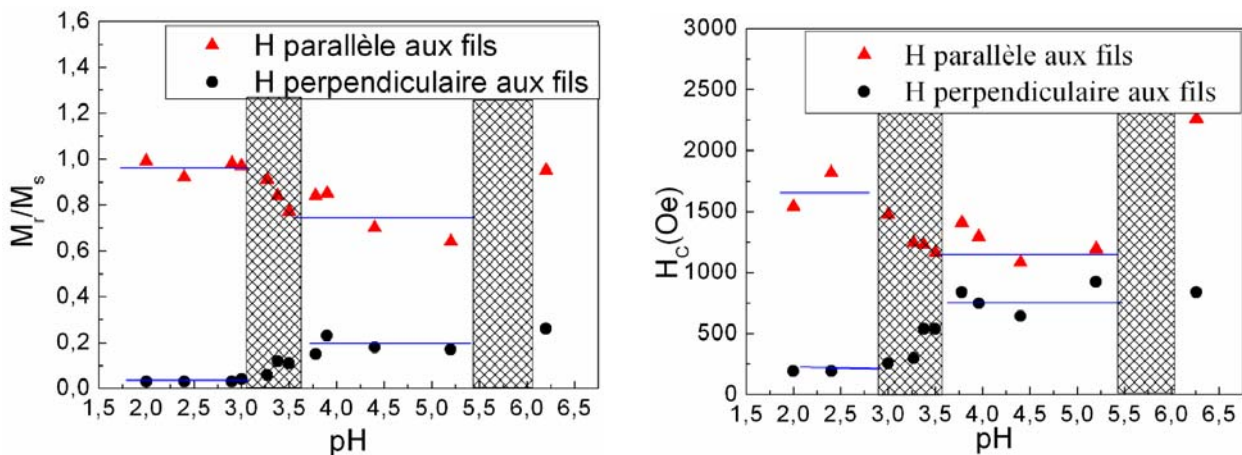


Fig. 6.21 a) La variation du M_r/M_s avec la valeur du pH et b) la variation du champ coercitif avec le pH pour des fils de Co de 29 nm diamètre

Ce comportement peut être expliqué si on considère l'axe facile orienté parallèlement à l'axe du fil.

Quand on revient sur la fig. 6.21 on voit que dans le troisième intervalle du pH (des valeurs de pH supérieures à 6) le rapport $M_r/M_s \sim 1$ quand le champ externe est appliqué parallèlement aux fils et il a une valeur assez petite quand le champ est perpendiculaire aux fils. Le champ coercitif lui aussi a des valeurs plus importantes par rapport au premier intervalle. Le fait que H_c est plus grand dans cet intervalle par rapport au premier intervalle, quand le champ externe est parallèle aux fils, suggère la présence d'une anisotropie plus grande. Ceci peut être obtenue si l'anisotropie magnéto- cristalline s'ajoute à celle de forme. En conclusion pour des pH plus grands que 6 l'axe c semble à être parallèle à l'axe de fil.

Dans le deuxième intervalle de pH (entre 3.5 et 5.5) le comportement du H_c et M_r/M_s est différent. Si le champ externe est appliqué parallèlement à l'axe du fil, les valeurs de H_c et de M_r/M_s sont plus petites que celles du premier intervalle. Si le champ externe est appliqué perpendiculairement à l'axe du fil, la situation est opposée, les valeurs de H_c et de M_r/M_s sont plus grandes que pour le premier intervalle. Ce comportement pourrait s'expliquer conformément aux arguments présentés au début de ce paragraphe (6.5.1) si l'axe c est considéré perpendiculaire à l'axe du fil. En regardant la forme des courbes d'hystérésis pour un pH de cet intervalle (fig. 6.20, pH 4.4), on remarque qu'elles sont spécifiques pour une situation où l'aimantation est parallèle à l'axe du fil. Ceci s'explique par la présence d'une anisotropie de forme supérieure à l'anisotropie magnéto- cristalline donc l'aimantation préférera la direction parallèle au fil.

6.5.2 Caractérisation RFM

Afin d'obtenir plus des informations sur l'orientation de l'axe c des mesures RFM ont été réalisées. Elles ont été faites à la température ambiante.

Ces études nous ont permis de déterminer la valeur du champ d'anisotropie effectif, en mesurant l'absorption d'une onde hyperfréquence par les fils pour plusieurs valeurs de fréquence de l'onde, en fonction d'un champ magnétique extérieur, appliqué parallèlement à l'axe des fils (le champ varie entre 10 kOe et 0 Oe).

La fréquence de résonance qu'on mesure est liée au champ d'anisotropie effectif et au champ externe appliqué, par la formule :

$$\frac{\omega}{\gamma} = \left[(H_{EF} \cdot \cos(2 \cdot \theta_0) + H_{AP} \cdot \cos(\theta_0 - \theta_H)) \cdot (H_{EF} \cdot \cos^2 \theta_0 + H_{AP} \cdot \cos(\theta_0 - \theta_H)) \right]^{1/2} \quad (6.3)$$

qui a été obtenue par la dérivée du deuxième ordre de l'énergie totale du système [Vittoria_93]. L'angle entre le champ externe appliqué H_{AP} et l'aimantation est θ_H . La position d'équilibre de l'aimantation θ_0 est déterminée à partir de la première dérivée de l'énergie totale par rapport à θ pour chaque H_{AP} et θ_H . Quand le champ appliqué H_{AP} est parallèle au fil ($\theta_H=0$), et $\theta_0=0$, l'équation se résume à :

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)_{//} = \sqrt{(H_{EF} + H_{AP}) \cdot (H_{EF} + H_{AP})} = H_{EF} + H_{AP} \quad (6.4)$$

Dans les mesures RFM, le pic d'absorption donne la valeur du champ de résonance H_{AP} pour une fréquence $\frac{\omega}{\gamma}$ ce qui nous permet de déterminer le champ d'anisotropie effectif H_{EF} .

Le modèle, que nous utilisons pour comprendre ces résultats, décrit le champ d'anisotropie effectif (H_{EF}) d'un réseau de fils comme la somme de trois contributions :

$$H_{EF} = H_{forme} - H_{dip} \pm \langle H_{MC} \rangle \quad (6.5)$$

Où H_{forme} est le champ d'anisotropie de forme, qui pour un cylindre infini peut être calculé par :

$$H_{forme} = 2 \cdot \pi \cdot M_S \quad (6.6)$$

Dans le cas de nos fils de Co le champ d'anisotropie de forme a la valeur : $H_{forme}=8,8kOe$.

H_{dip} est le champ d'interaction dipolaire entre les fils, qui se calcule de manière suivante :

$$H_{dip} = 6 \cdot \pi \cdot M_S \cdot P \quad (6.7)$$

où P est la porosité de la membrane [Encinas_01]. La formule 6.7 comporte deux composantes : $4 \cdot \pi \cdot M_S \cdot P$ due aux charges magnétiques situés aux bouts des fils (la membrane avec les fils peut être considéré comme une couche continue de porosité P) et $2 \cdot \pi \cdot M_S \cdot P$ due aux charges de surface situés le long du fil et apparues pendant la précession de l'aimantation. Pour des fils de Co déposés dans une membrane de porosité 3% la valeur du champ d'interaction dipolaire est : $H_{dip}=800Oe$.

Le dernier terme de l'équation (6.5) est $\langle H_{MC} \rangle$, le champ d'anisotropie magnéto- cristalline moyen dont la valeur dépend de l'orientation moyenne des grains au sein des fils.

Les résultats de l'étude RFM sont montrés sur la fig. 6.22.

On observe qu'en fonction du pH, le champ d'anisotropie effectif peut varier depuis 5kOe pour pH= 5.6 jusqu'à 11kOe pour pH= 6.2 Oe. Les différentes valeurs de H_{EF} sont attribuées à une variation de la valeur et d'orientation du champ d'anisotropie magnéto- cristalline, et donc à un changement de la microstructure des fils électrodéposés.

En effet, pour des pH entre 2 et 3 la valeur de H_{EF} est autour de 8 kOe. Cette valeur est un peu en dessous de la valeur donnée par la différence entre le champ d'anisotropie de forme et le champ d'interaction dipolaire. Ainsi ceci indique que l'anisotropie magnéto- cristalline est négligeable pour des pH dans cet intervalle. Ceci peut s'expliquer par une

structure désordonnée ou bien cubique face centrée (fcc). La présence de la phase fcc à des valeurs faibles du pH a été mise en évidence pour des films de Co [Nakahara_82] [Gaiger_76].

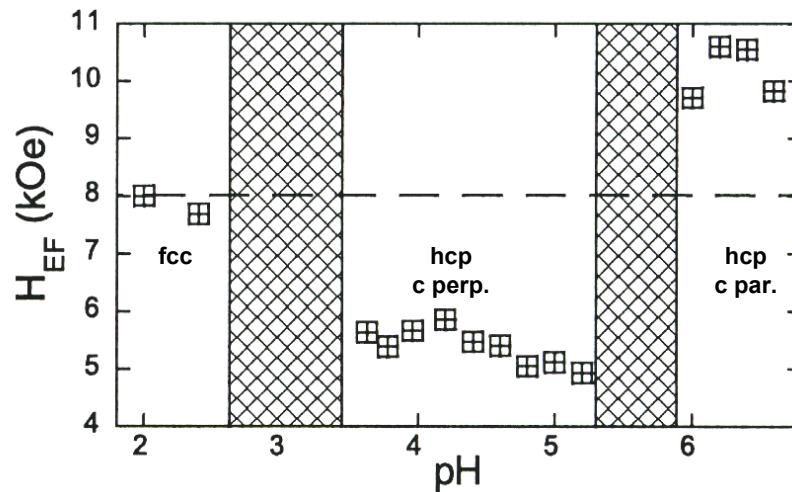


Fig. 6.22 Champ effectif en fonction du pH pour des fils de Co de 29 nm de diamètre obtenu à partir des mesures RFM [Darques_04]

En revanche, pour des valeurs de pH comprises entre 3 et 5.6 la réduction du champ effectif (il arrive jusqu'à 4.8 kOe pour un pH de 5.6) est cohérente avec une interprétation où la composante magnéto cristalline s'oppose au champ d'anisotropie de forme, c'est-à-dire avec une structure hexagonale compacte (hcp) dont l'axe c est orienté perpendiculairement à l'axe des fils.

De façon similaire, la forte augmentation du champ effectif à pH 6.2 ($H_{EF} = 11 \text{ kOe}$), indique une composante magnéto- cristalline s'ajoutant au champ d'anisotropie de forme, c'est-à-dire une structure hcp dont l'axe c est parallèle à l'axe des fils.

Résumé et conclusions :

Les mesures VSM et RFM nous ont permis de mettre en évidence l'influence du pH du bain électrolytique sur l'orientation de l'axe c dans les fils électrodéposés de 29 nm diamètre.

Pour une valeur du pH de 2.0 l'orientation de l'aimantation le long du fil est favorisée. L'augmentation du pH jusqu'à 5.6 conduit à un axe c perpendiculaire au fil (ou incliné) et pour des valeurs plus grandes l'axe c redevient parallèle à l'axe du fil.

6.5.3 Caractérisation MFM

Afin de vérifier les conclusions obtenues après les mesures VSM et RFM nous avons réalisé une caractérisation MFM des échantillons. Cette caractérisation a été réalisée pour de fils de Co de deux diamètres différents : 29 nm et 35 nm. Les fils de 29 nm diamètre ont été préparés avec une solution électrolytique de pH 2.0 et les fils de 35 nm avec un pH 2.0 et 4.4.

Nous allons commencer avec l'étude MFM réalisé sur les fils de pH 2.0 (diamètre 29 nm). Le fil présenté sur la fig. 6.23, a une longueur de 6.2 μm et les mesures MFM ont été réalisés sous champ magnétique externe appliqué le long du fil dans le plan. La valeur du champ appliqué peut varier entre 0 Oe et 300 Oe.

L'image MFM obtenues en champ nul montre l'existence de plusieurs domaines séparés par des parois tête- bêtes. La présence de ce type de paroi suggère que l'aimantation est orientée suivant l'axe du fil. Ces observations sont en concordance avec les conclusions obtenues suite à des mesures VSM et MFM sur des fils de pH 2.0 (section 6.5.1 et 6.5.2).

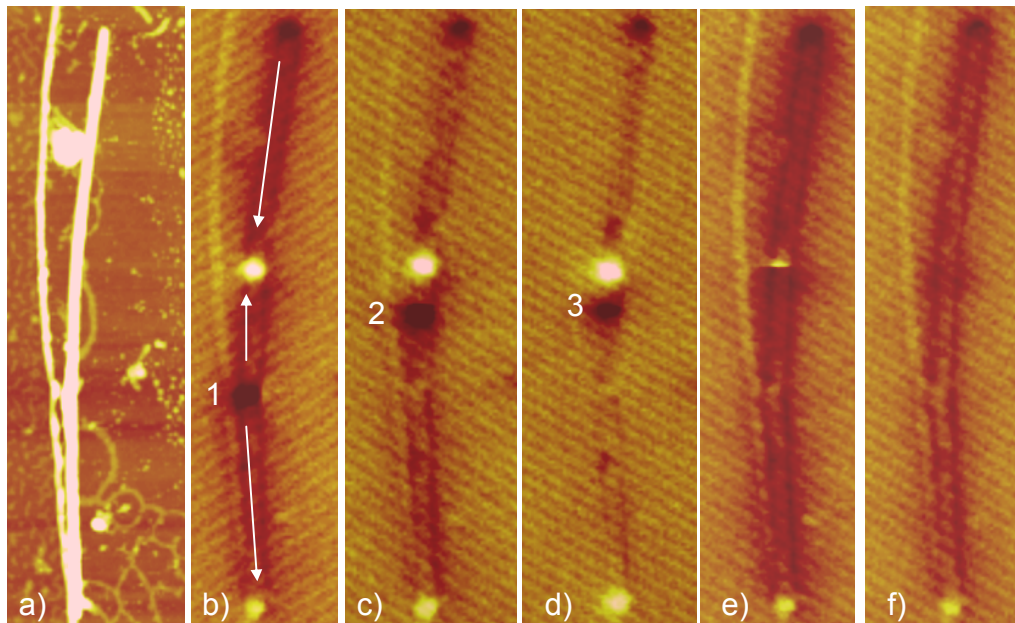


Fig. 6.23 a) Image topographique d'un fil de 29 nm diamètre et de pH 2.0 ; b) image magnétique du même fil en champ zéro; c) image magnétique en $H=45$ Oe ; d) champ externe appliqué $H=64$ Oe ; e) et f) champ externe $H=300$ Oe

Comme on peut voir dans l'image 6.23a \rightarrow f nous avons mené notre étude MFM en augmentant progressivement la valeur du champ externe. Quand le champ externe appliqué est de 45 Oe une des parois commence à se déplacer de sa position initiale 1 vers la position 2. Elle va rester dans cette position jusqu'à ce que la valeur du champ externe arrive à 64 Oe ;

valeur suffisamment grande pour dépiéger la paroi et la déplacer en position 3. La paroi va rester piégée dans la position 3 jusqu'à ce que la valeur du champ atteigne 300 Oe. A cette valeur du champ la paroi est dépiégée, elle va se déplacer et va annihiler la paroi la plus proche. Cette étude MFM en fonction de la valeur du champ externe montre qu'il y a des centres de piégeage d'intensité différente dus aux défauts structuraux, les parois étant dépiégées à des valeurs de champ différentes.

Le changement des propriétés magnétiques induit par la variation du pH de la solution électrolytique est bien mis en évidence par des fils de diamètre plus large 35 nm.

Dans le cas des fils préparés à un pH 2.0 et ayant un diamètre de 35 nm on attend une aimantation parallèle à l'axe du fil. L'image 6.24a montre un fil de 35 nm diamètre et de pH 2.0 en champ nul après une saturation perpendiculaire au plan de l'échantillon. Le fil est composé de trois domaines magnétiques avec l'aimantation le long de l'axe du fil. La longueur des domaines varie entre 2 μm et 6 μm .

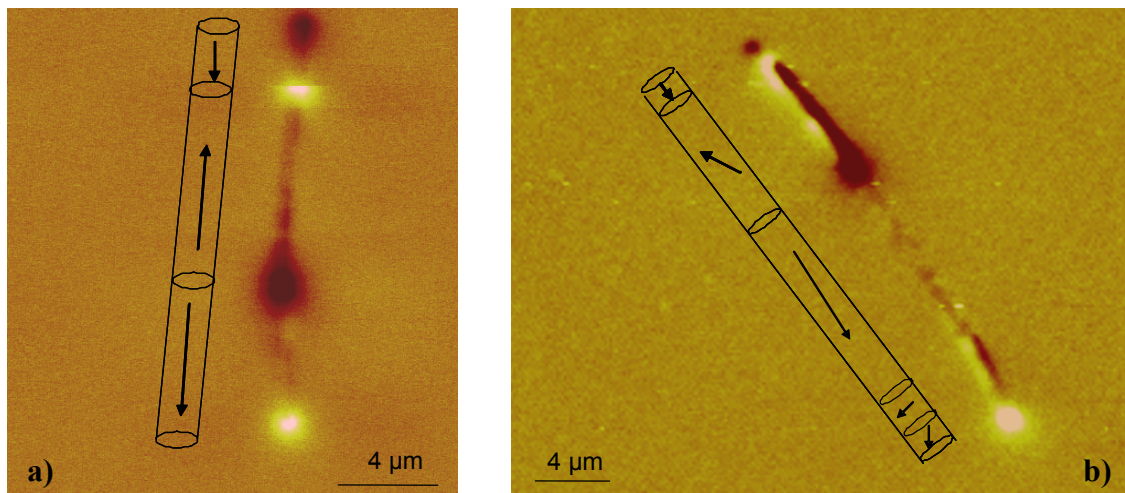


Fig. 6.24 Images MFM de fils de 35 nm de diamètre et avec un pH: a) 2.0 et b) 4.4

Pour des fils de même diamètre (35 nm) mais avec un pH plus grand 4.4, le contraste magnétique montré par les fils en champ nul est plus compliqué. En effet on peut voir dans l'image 6.24b qui représente un fil d'une longueur de 7 μm la présence de plusieurs domaines ayant de différentes orientations de l'aimantation par rapport à l'axe du fil : parallèle, incliné et perpendiculaire. L'apparition de ces trois orientations possible de l'aimantation dans le même fil peut être expliquée par le fait que conformément aux études VSM et RFM un pH 4.4 détermine une orientation de l'axe c perpendiculaire à l'axe du fil.

6.6 L'influence du courant de dépôt

La valeur du pH du bain électrolytique n'est pas le seul paramètre qui influence l'orientation de l'axe c. Des études antérieures faites sur des couches minces de Co électrodéposés, ont montré qu'en fonction de la densité du courant de dépôt, l'axe c peut être orienté soit perpendiculairement soit parallèlement au plan de la couche [Chen82].

Nous avons étudié l'influence du courant sur les propriétés structurales pour des fils de différents diamètres. Des fils de diamètre de 29 nm et 70 nm avec des pH entre 5.2 et 5.8 ont été préparés à de différentes valeurs de la densité de courant : entre 5 mA/cm² qu'on va nommer à partir de maintenant faible courant et 50 mA/cm², fort courant. Pour les fils de 29 nm diamètre et pH 5.2 une étude complète a été effectuée: RFM (réalisé par M. Darques, PCPM/Louvain), TEM et VSM. Pour les autres fils, seule une étude VSM a été réalisée.

6.6.1 Caractérisation RFM

Les mesures RFM sont réalisées en utilisant le même protocole de mesure que celui décrit dans la section 6.5.2. Ces études ont permis la détermination de la valeur du champ d'anisotropie effectif pour les fils de 29 nm de diamètre préparés à deux valeurs de la densité de courant et avec un pH qui varie dans l'intervalle 4 et 6.5, valeurs qui sont montrées sur la fig. 6.25.

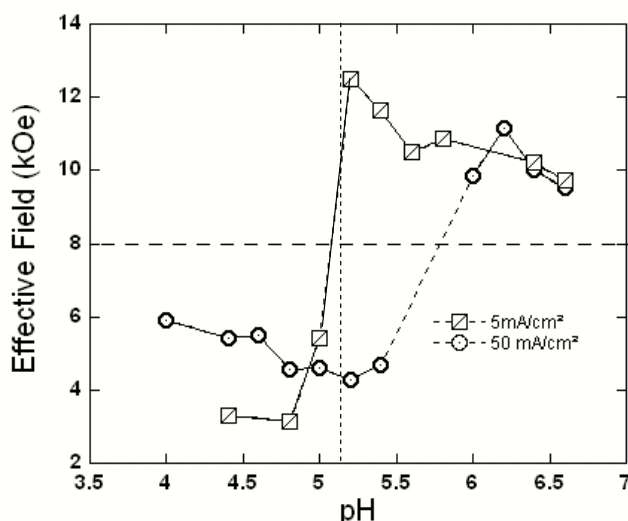


Fig. 6.25 La dépendance du champ effectif mesuré par RFM en fonction de la valeur du pH pour des fils de 29 nm diamètre

Comme nous l'avons montré précédemment dans l'étude de l'influence du pH (fig. 6.22), une importante augmentation de H_{EF} apparaît pour des pH supérieurs à 5.6, ce qui a été expliqué comme le résultat du passage de l'axe c de la direction perpendiculaire aux fils à une direction parallèle aux fils. L'influence de la densité du courant se manifeste de la manière suivante : la transition de l'axe c perpendiculaire à l'axe c parallèle à l'axe du fil est décalée vers des valeurs plus basses du pH en diminuant la densité du courant.

Dans le cas des fils préparés à faible densité de courant, la transition a lieu dans un intervalle de pH compris entre 5 et 5.2 et pour les fils préparés à fort courant de dépôt, entre pH 5.5 et 6. Donc quand le pH est compris entre 5.2 et 5.5, les fils ont un comportement différent en fonction de la valeur de la densité du courant. Nous allons discuter par la suite le cas des fils déposés à partir d'une solution de pH 5.2.

Les fils préparés à forte densité de courant ($50\text{mA}/\text{cm}^2$) ont un champ effectif de 4.5kOe qui est plus petit que la différence entre le champ d'anisotropie de forme, H_{forme} , et le champ d'interaction dipolaire H_{dip} . Ceci s'explique par la présence d'une composante magnéto- cristalline qui s'oppose au champ d'anisotropie de forme, c'est-à-dire par une structure hexagonale compacte (hcp) dont l'axe c est orienté perpendiculairement à l'axe des fils.

Pour les fils préparés avec une faible densité de courant ($5\text{mA}/\text{cm}^2$), le champ effectif est de 13kOe, valeur qui est plus grande que la différence $H_{forme} - H_{dip}$. Cela s'explique par la présence d'une composante magnéto- cristalline s'ajoutant au champ d'anisotropie de forme, donc une structure hcp avec l'axe c parallèle à l'axe des fils.

Ceci nous permet de conclure que les fils de 29 nm de diamètre et pH 5.2 ont différentes orientation de l'axe c en fonction de la valeur de la densité du courant : faible densité de courant implique un axe c parallèle et forte densité de courant un axe c perpendiculaire à l'axe du fil.

6.6.2Caractérisation TEM

J'ai analysé en TEM les fils de pH 5.2, diamètre 29 nm, obtenus avec un faible courant de dépôt et un fort courant de dépôt. Les fils proviennent de la même membrane qui a été mesurée en RFM et VSM, membrane qui a été dissolue et ensuite les fils ont été déposés sur une grille de SiN.

a) pH 5.2, faible courant de dépôt

Nous avons analysé une dizaine de fils en haute résolution, sur toute leur longueur (1 μm -2 μm). On n'a pas remarqué de variations importantes de diamètre d'un fil à l'autre. La valeur moyenne du diamètre est de $28 \pm 2 \text{ nm}$. Dans la détermination du diamètre on n'a pas pris en considération la couche (d'oxyde et de membrane) qui entoure les fils. L'épaisseur de cette couche estimée à partir des images de haute résolution est d'environ 6 nm. La présence de cette couche est visible autour du fil présenté sur la fig. 6.26a. Ce fil est en fait une partie d'un fil de longueur totale de 800 nm qui a été analysé en totalité.

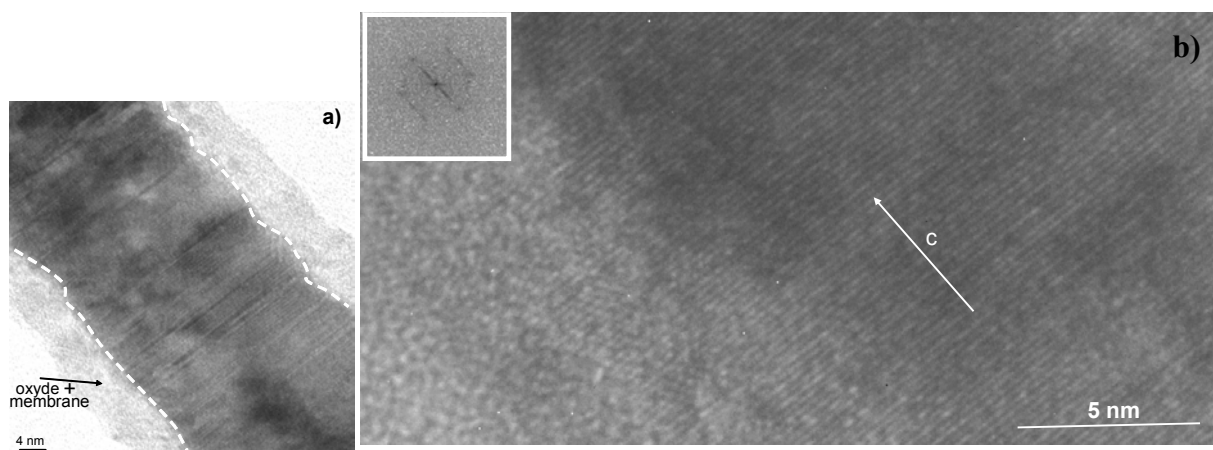


Fig. 6.26 a) Image d'une partie de 100 nm d'un fil de longueur totale de 800 nm longueur et de 29 nm diamètre. On remarque la présence de la couche d'oxyde de Co qui entoure le fil ; b) Image de haute résolution (obtenue par le zoom de l'image a) et de diffraction d'un fil de 29 nm qui présente un axe c parallèle à l'axe du fil (insertion en haute à gauche)

Un zoom sur l'image 6.26a nous a permis de voir très clairement les plans atomiques, plans par rapport aux quels l'axe c est perpendiculaire (fig. 6.26b).

L'image de diffraction qui a été obtenue à partir de cette image de haute résolution avec le logiciel de traitement des images « SCION » montre elle aussi un axe c parallèle à l'axe du fil. Les images de diffraction réalisées sur toute la longueur du fil sont les mêmes ce qui atteste l'homogénéité du fil.

Parmi les fils analysés, on a trouvé que 40% des fils présentent une image de diffraction indiquant que l'axe c n'est pas exactement parallèle à l'axe du fil, mais incliné légèrement avec un angle d'environ 10°. Une image de haute résolution d'un de ces fils et l'image de diffraction qui lui correspond, sont présentées sur la fig. 6.27.

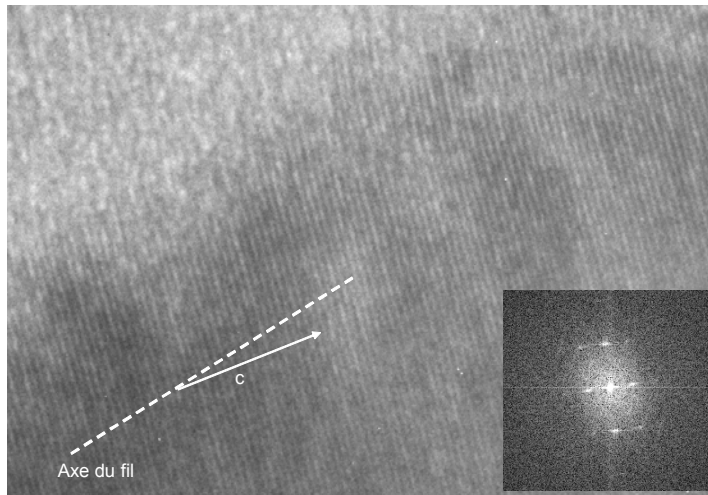


Fig. 6.27 Image de haute résolution et de diffraction d'un fil de 29 nm qui présente un axe c incliné par rapport à l'axe du fil

Pour conclure, on peut dire que les fils ont un axe c le long du fil ou incliné avec un angle d'environ 10° , et sont homogènes dans le sens qu'ils ne sont pas constitués de plusieurs grains de différentes orientations.

b) pH 5.2, fort courant de dépôt

Une analyse TEM a été réalisée sur une dizaine de fils préparés à fort courant de dépôt. Le diamètre moyen de ces fils est de $26 \pm 2 \text{ nm}$. Comme précédemment, dans le calcul du diamètre des fils nous n'avons pas pris en considération l'épaisseur de la couche d'oxyde qui entoure le fil et qui est d'environ 5 nm.

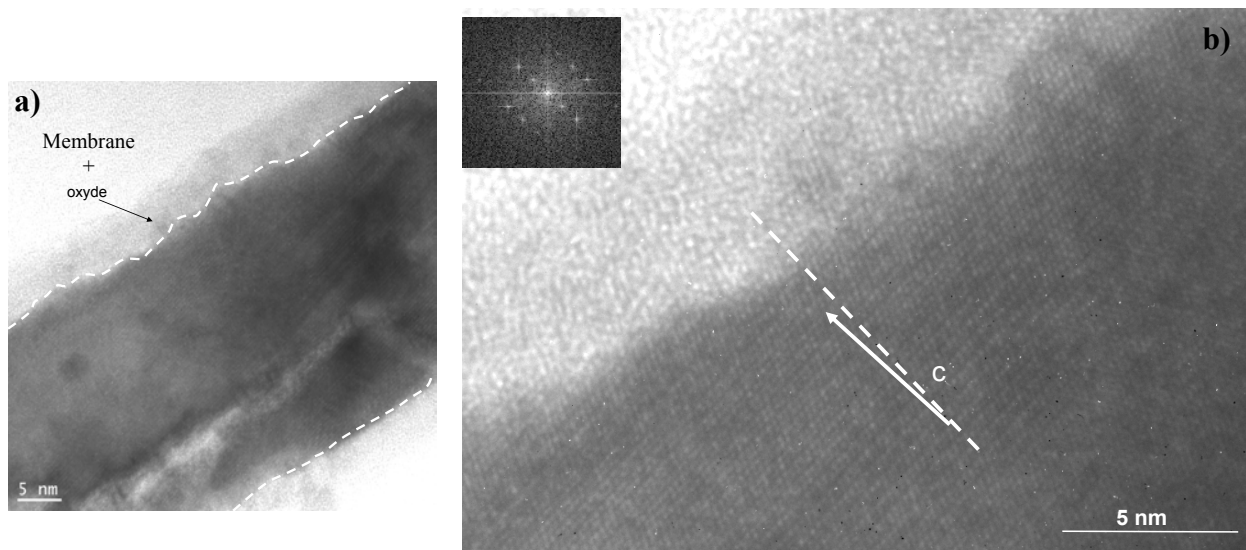


Fig. 6.28 a) Image TEM d'une partie d'un fil, partie de longueur 80 nm b) Images de haute résolution obtenue par le zoom de l'image a) et image de diffraction qui lui correspond. Le fil a un axe c perpendiculaire à l'axe du fil

Une partie d'environ 80 nm d'un fil est présentée sur la fig. 6.28a. Un zoom de cette image est montré sur la fig. 6.28b. La même image contient aussi l'image de diffraction qui lui correspond et qui a été obtenue par sa transformée de Fourier.

L'image de diffraction montre un axe c qui est incliné avec un angle d'environ 4° par rapport à l'axe perpendiculaire au fil.

En revanche, la grande majorité des fils ont présenté un axe c qui est perpendiculaire au plan du fil.

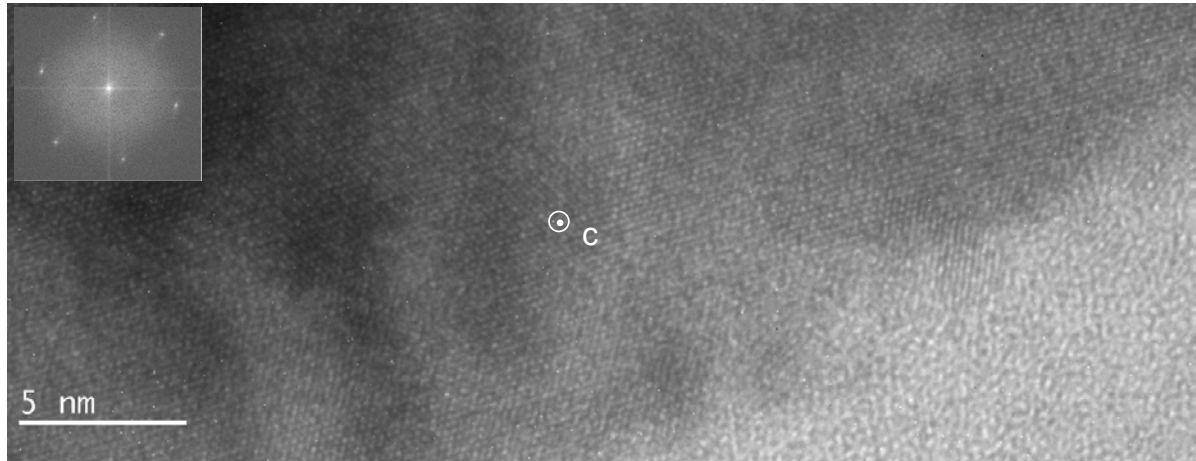


Fig. 6.29 Images de haute résolution et de diffraction d'un fil de 29 nm, préparé avec un fort courant de dépôt qui a un axe c perpendiculaire au plan de l'image

Une image de haute résolution d'un de ces fils est présentée sur la fig. 6.29. En comparant, l'image de diffraction, qui correspond à cette image de haute résolution et qui est également présentée sur la fig. 6.29, avec les images de diffraction théoriques on obtient un axe c perpendiculaire au plan du fil.

En conclusion, les fils obtenus avec un fort courant de dépôt sont des fils homogènes avec un axe c orienté perpendiculairement à l'axe du fil ou incliné par rapport à cette direction avec un angle assez faible ($\sim 4^\circ$)

6.6.3 Caractérisation VSM

a) Petit diamètre (29 nm)

La caractérisation VSM a été réalisée pour des fils de deux diamètres différents en fonction de la valeur du courant de dépôt. Les fils préparés avec un pH 5.2 ayant un diamètre de 29nm qui sont analysés ont été déposés à trois valeurs différentes de la densité du courant : faible densité (5mA/cm^2), fort courant (50mA/cm^2) et très fort courant. Pendant cette étude

nous avons utilisé le même système de fils qui ont servi pour les mesures RFM. Les courbes d'aimantation obtenues en appliquant le champ externe parallèlement et perpendiculairement à l'axe du fil sont présentées sur la fig. 6.30.

Conformément aux résultats RFM on attendait pour la faible densité de courant un axe c le long du fil et pour les autres valeurs de la densité de courant un axe c perpendiculaire à l'axe du fil.

On observe un changement d'allure des courbes pour les fils préparés à différents courants de dépôt ce qui soutient l'idée de l'influence du courant de dépôt sur les propriétés des fils électrodéposés (fig. 6.30).

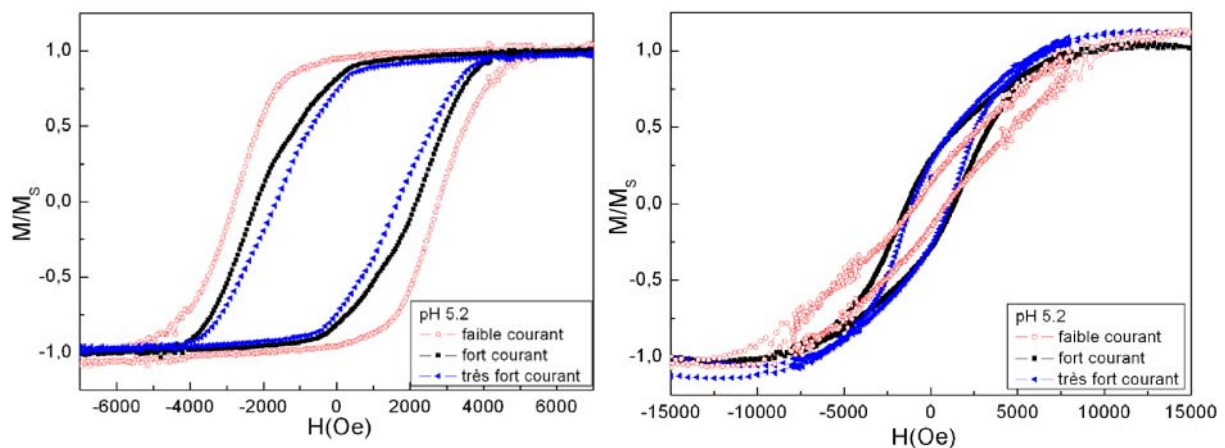


Fig. 6.30 Courbes d'aimantation pour des fils de 29 nm de diamètre et pH 5.2 en fonction de la densité de courant quand le champ externe a été appliqué : a) parallèlement aux fils et b) perpendiculairement aux fils

A partir des courbes d'hystérésis mesurées, on a déduit les valeurs M_R/M_S et les valeurs du champ coercitif H_c qui sont représentés sur la fig. 6.30 en fonction du courant de dépôt utilisé pour préparer les fils. On observe qu'en augmentant la valeur du courant, quand le champ externe est appliqué parallèlement aux fils, le rapport M_r/M_s diminue d'une valeur de 0.95 pour le faible courant à 0.75 pour de fort courant. Le champ coercitif lui aussi diminue avec l'augmentation de la densité du courant.

Quand le champ externe de mesure est appliqué perpendiculairement aux fils la valeur du rapport M_r/M_s augmente avec le courant.

Pour la faible densité de courant, l'anisotropie magnéto- cristalline s'ajoute à l'anisotropie de forme donc l'axe de facile aimantation est le long du fil et ceci explique très bien les grandes valeurs de la rémanence et du champ coercitif obtenues quand le champ externe est appliqué parallèlement aux fils.

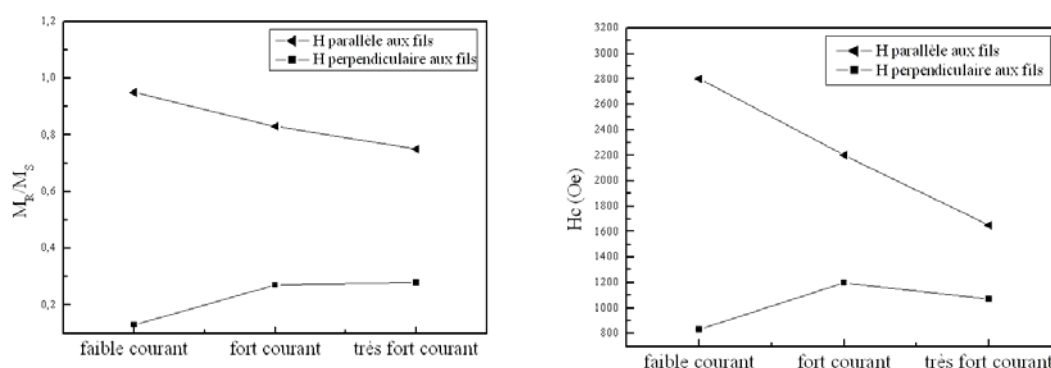


Fig. 6.31 La dépendance de la rémanence et du champ coercitif en fonction du courant de dépôt pour des fils de 29 nm diamètre et pH 5.2

En augmentant la densité du courant on a une compétition entre l'anisotropie magnétocristalline qui essaie d'aligner l'aimantation perpendiculairement au fil et l'anisotropie de forme qui essaie de l'aligner parallèlement au fil. Comme l'anisotropie de forme dépasse l'anisotropie magnétocristalline, l'axe de facile aimantation effective sera orienté le long du fil mais il sera plus facile de renverser l'aimantation dans les fils. Ceci peut expliquer les valeurs encore grandes du champ coercitif et de l'aimantation à la rémanence mais aussi leur diminution par rapport aux valeurs qui caractérisent les fils obtenus à faible courant.

Le cas des fils déposés à très fort courant doit être traité différemment à cause de l'incorporation d'hydrogène qui accompagne le dépôt et qui conduit à une perturbation de la structure (fautes d'empilement, mélange de structure fcc avec hcp). L'apparition d'une structure fcc à très fort courant de dépôt a été mise en évidence pour des couches minces de Co [Cohen_02].

b) Grand diamètre (70 nm)

Pour des fils de grand diamètre 70 nm obtenues à quatre valeurs différentes du courant : faible courant, intermédiaire, fort courant et très fort courant on a mesuré les courbes d'aimantation en appliquant le champ externe parallèlement et perpendiculairement aux fils (fig. 6.31).

On va essayer de vérifier si les conclusions obtenues pour le diamètre 29 nm peuvent s'appliquer ici aussi, cela veut dire : une faible densité de courant conduit à un axe c parallèle aux fils et une forte densité de courant à un axe c perpendiculaire aux fils.

Comme on peut le voir sur la fig. 6.32, le passage d'un courant de dépôt faible vers un courant de dépôt fort conduit à la diminution du rapport M_R/M_S et du champ coercitif H_C . Ce comportement est similaire à celui observé pour les fils de 29 nm de diamètre mais les valeurs M_R/M_S et H_C sont plus faibles.

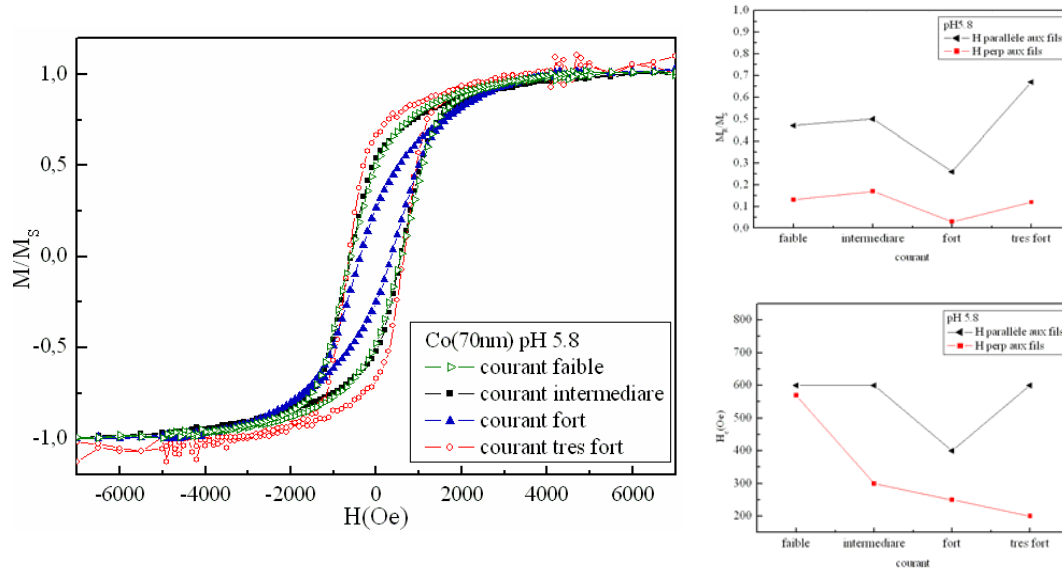


Fig. 6.32a) Hystérésis pour des fils de 70 nm mesurés quand le champ externe est parallèle aux fils, b) la dépendance de M_R/M_S en fonction du courant, c) la dépendance de H_C avec le courant

Un désalignement de l'aimantation plus important par rapport à l'axe du fil pourrait expliquer ce comportement.

Les fils obtenus à très fort courant ont un comportement différent par rapport aux autres fils analysés de même diamètre. Quand le champ est appliqué parallèlement à l'axe du fil, ils sont caractérisés par une rémanence et un champ coercitif plus importantes. Quand le champ est appliqué perpendiculairement à l'axe du fil, la rémanence et le champ coercitif sont assez faibles. Ce comportement pourrait s'expliquer si l'aimantation est orientée dans ces fils parallèlement à l'axe du fil. Comme nous avons mentionné auparavant pour les fils de 29 nm, l'électrodéposition des fils de Co à un courant très fort conduit à une perturbation de la structure des fils à cause de l'incorporation d'hydrogène. Il en résulterait une perte d'anisotropie magnéto- cristalline donc le système sera dominé par l'anisotropie de forme.

Les mesures VSM nous ont permis de mettre en évidence l'influence du courant de dépôt sur le comportement magnétique des fils de 70 nm diamètre. En diminuant la valeur du courant, l'axe de facile aimantation s'éloigne de plus en plus de l'axe du fil, mais pour des

valeurs trop grandes du courant la croissance est fortement perturbée et un mélange des structures fcc et hcp peut apparaître.

6.5. Conclusions

Dans cette étude nous nous sommes intéressés aux propriétés magnétiques et structurales des fils de cobalt et de l'influence de plusieurs paramètres sur ces propriétés comme par exemple : leur diamètre, le pH de la solution électrolytique ou le courant de dépôt.

L'étude en fonction du diamètre des fils, réalisée sur des fils ayant des diamètres qui varient entre 18 nm et 60 nm nous a montré que pour des fils préparés à un potentiel constant et avec un pH de 3.9, l'orientation de l'axe facile est plutôt aléatoire. On a mis en évidence la présence dans les fils de petit diamètre 18 nm, des grains d'environ 10 nm de long avec un axe c le long du fil et perpendiculaire aux fils. En augmentant le diamètre des fils jusqu'à 36 nm, les fils sont plus homogènes et trois orientations possibles de l'axe c ont été mises en évidence par mesures TEM : parallèle, perpendiculaire ou incliné par rapport à l'axe du fil. Les fils de diamètre plus grand (60 nm) présentent des grains plus grands (<100 nm) et avec différentes orientations de l'axe c.

Afin de mieux contrôler l'orientation de l'axe c, on a fait varier plusieurs paramètres de préparation: le pH de la solution électrolytique et la valeur du courant de dépôt.

La variation du pH entre 2.0 et 6.4 a été étudiée pour des fils de diamètre 29 nm. Les études VSM nous ont montré que les fils de petit diamètre ont un axe c qui s'oriente suivant l'axe du fil et que si on augmente la valeur du pH on va obtenir des fils avec un axe c plutôt perpendiculaire aux fils.

Un autre paramètre qui a été varié est la valeur du courant de dépôt. On a fait varier le courant entre 0,5 mA (faible courant de dépôt) et 9 mA (fort courant de dépôt) pour deux types de fils : fils de 29 nm de diamètre déposés sous pH 5.2 et fils de 70 nm de diamètre déposés sous pH 5.8.

Les fils de 29 nm et de 70 nm montrent un comportement semblable. Le dépôt à faible courant favorise la croissance des fils avec un axe facile le long du fil, et en augmentant la valeur du courant l'axe c s'oriente vers l'axe perpendiculaire à l'axe du fil.

Une augmentation trop importante du courant de dépôt conduit à une perturbation importante de la croissance des fils, l'apparition de fautes d'empilement ou d'un mélange des structures fcc et hcp étant possible.

En conclusion on pourrait dire que les fils de 29 nm diamètre, préparés à un pH 5.2 et avec un faible courant de dépôt ont un axe c qui est bien aligné parallèlement à l'axe du fil.

Perspectives

L'étude réalisée jusqu'à présent qui a permis l'optimisation du processus de croissance des fils de Co (control de l'orientation de l'axe c dans les fils de structure hcp) peut être poursuivie par des études corrèles MFM et TEM réalisées sur les même fil. Egalement des études VSM peuvent être réalisées afin d'obtenir des informations sur les valeurs du champ de dépiégeage.

Une étude semblable sur la distribution et les valeurs du champ de dépiégeage pour des fils de Co et Ni de diamètre de 40 nm a été réalisée par Henry et al. [Henry_02]. La méthode d'étude a été la suivante. Les ensembles de fils dans la membrane ont été saturés en appliquant le champ externe à des angles θ_H entre 0 et 180° par rapport à l'axe des fils et après, une courbe de première aimantation est enregistrée, le champ externe étant cette fois parallèle aux fils. La dérivée de ces courbes de première aimantation en fonction du champ magnétique appliqué nous donne les courbes de susceptibilité $\chi(H) = \frac{dM(H)}{dH}$ qui sont liées directement à la distribution du champ de renversement [Simmons_90].

Comme on le voit sur la fig. 6.33, pour les fils de Co, après une saturation à $\theta_H = 180^\circ$ qui force tous les fils dans la membrane dans un état monodomaine, la courbe de susceptibilité présente un seul pic qui va correspondre au renversement de l'aimantation en configuration monodomaine (SDR- single domain reversal).

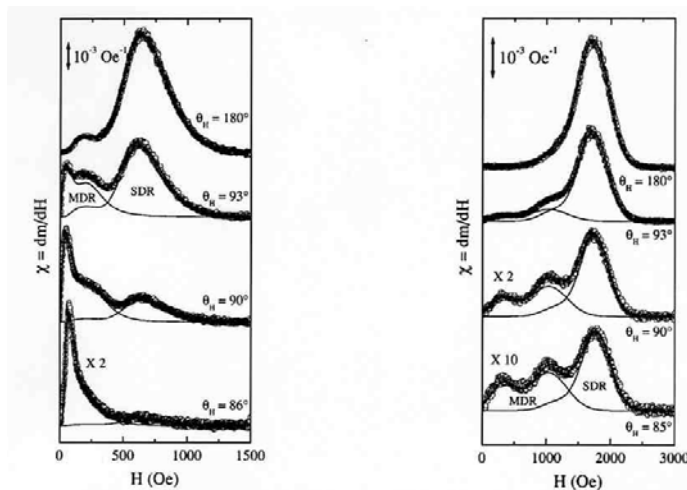


Fig. 6.33 Les dérivées des courbes de première aimantation [Henry_02]

Lorsqu'on diminue la valeur de l'angle θ_H deux pics supplémentaires apparaissent, leur intensité augmentant quand l'angle s'approche de 90° . La saturation à un angle autour de 90° va changer l'état monodomaine des fils en introduisant un nombre maximal de domaines. La formation de ces multidomaines peut être expliquée par le fait qu'après la saturation en diminuant le champ externe, un couple du à l'anisotropie de forme et au champ va faire tourner progressivement l'aimantation vers l'axe du fil; et comme il y a deux directions possibles pour l'aimantation suivant l'axe du fil qui sont équivalentes il y a la possibilité d'apparition d'au minimum deux domaines avec l'aimantation opposés.

L'apparition de ces deux pics supplémentaires (MRD –multidomaine remagnetization) a été expliquée par un retournement de l'aimantation totalement différent dans ces fils. Le premier pic à des champs faibles est attribué au déplacement des parois nucléées au bout des fils, parois qui réussissent à passer les premiers centres de piégeage nommés aussi centres de piégeage faible et le deuxième pic correspond au passage des parois par les centres de piégeage forts.

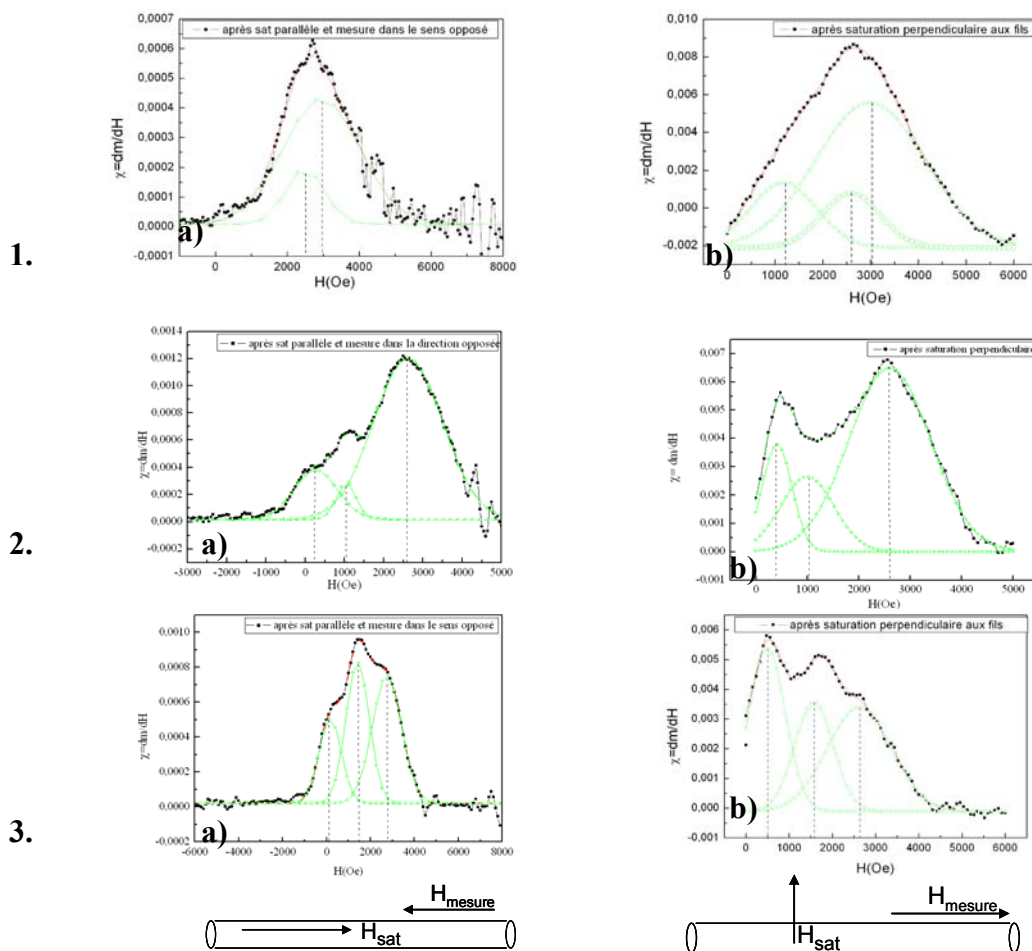


Fig. 6.34 Les dérivées des courbes de première aimantation obtenues après la saturation a) parallèle et b) perpendiculaire aux fils, en fonction du champ pour des fils déposés à: 1) faible courant, 2) fort courant et 3) très fort courant

Nous avons réalisés des études préliminaires sur de fils de 29 nm de diamètre préparés à un pH de 5.2 et à trois valeurs du courant de dépôt. Les mesures VSM et RFM ont montré pour les fils déposés à faible courant que l'axe c est parallèle à l'axe du fil et que pour les fils déposés à fort courant, l'axe c est perpendiculaire à l'axe du fil.

Les courbes obtenues après la dérivée de la courbe de première aimantation pour les fils obtenus à trois valeurs de courant sont présentées sur la fig. 6.34. On observe que toutes les courbes présentent un ou plusieurs pics qui sont assez larges. Ces pics peuvent être ajustés avec plusieurs pics (2, 3 ou plus). Ceci est une preuve de l'inhomogénéité des fils qui présentent des domaines magnétiques après saturation perpendiculaire. Dans le cas où une rotation cohérente aurait lieu, on devrait ne retrouver qu'un seul pic.

Une corrélation de ces mesures avec des mesures MFM serait utile et pourrait nous apporter plus d'information sur le renversement de l'aimantation dans les fils.

Références bibliographiques du chapitre 6:

- [Aharoni_97] A. Aharoni, in "Coherent and Incoherent Magnetisation Processes in Non-interacting Particles", vol 338 of NATO Advanced Study Institute, Series E: Applied Sciences, edited by G.C.Hadjipaucyis (Kluwer Academic, Dordrecht 1997)
- [Arai_89] I. Arai, J. Magn. Soc. Jpn. **13**, 789 (1989)
- [Asti_74] G. Asti, S.Rinaldi, J. Appl. Phys. **45**, 3600 (1974)
- [Barandiaran_89] M. Barandiaran, M. Vazquez, IEEE Trans. Magn. **25**, 3330 (1989)
- [Chen82] T. Chen, P. Cavalloti, Appl. Phys. Lett. **41**(2), 205- 207 (1982)
- [Cohen_02] T. Cohen, W. Kaplan, J. Yahalom, Electrochimical and Solid- State Letters, **5**, C75 (2002)
- [Croll_87] I.M. Croll, IEEE Trans. Magn. **23**, 59 (1987)
- [Darques_04] M. Darques, A. Encinas, L. Vila, L. Piraux, J. Phys. D : Appl. Phys., **37**, 1411 (2004)
- [Ebels_00] U. Ebels, A. Radulescu, Y. Henry, L. Piraux and K. Ounadjela Phys.

- Rev. Lett. **84**, 983 (2000)
- [Elhoussine_02] F. Elhoussine, S. Matefi- Tempfli, A. Encinas and L. Piraux, Appl. Phys. Lett., **81**, 1681 (2002)
- [Encinas_01] A. Encinas, M. Demant, L. Piraux, U. Ebels, Phys. Rev. B **63**, 104415 (2001)
- [Ferre_97] R. Ferre, K. Ounadjela, J.M.George, L. Piraux, S. Dubois, Phys. Rev. B, **56**, no21 (1997)
- [Fert_99] A. Fert and L. Piraux, J. Magn. Mag. Mat. **200**, 338 (1999)
- [Gaiger_76] H. Gaiger and N. Van der Berg, Electrochem Acta, **21**, 45 (1976)
- [Garcia_02] J. M. Garcia, A. Thiaville, J. Miltat, L. Vila, L. Piraux, Colloque Louis Néel , Gerardmer, 2002
- [Gargia-Arribas_92] A. Garcia-Arribas, M. Barandiaran, J.Appl.Phys. **71**, 3047 (1992)
- [Grollier_01] J. Grollier, V. Cros, A. Hamzic, J.M. George, H. Jaffrès, A. Fert, G. Faini, J. Ben Youssef, H. Legall, Appl. Phys. Lett. **78**, 3663 (2001)
- [Henry_01] Y. Henry, K. Ounadjela, L. Piraux, S. Dubois, Eur. Phys. J. B. **20**, 35-54 (2001)
- [Henry_02] Y. Henry , Phys. Rev. B **66**, 184430 (2002)
- [Katine_00] J. Katine, F.J. Albert, R.A. Buhrman, Phys. Rev. Lett. **84**, 3149 (2000)
- [Kawai_76] S.Kawai and R. Ueda, J. Electrochem. Soc **122**, 32 (1976)
- [Lakshmi_97] B.B. Lakshmi, P. K. Dorhout and C.R. Martin, Chem. Mater. **9**, 857 (1997)
- [Luborsky_61] Luborsky, J. Appl. Phys. **32**, 171S (1961)
- [Luborsky_64] Luborsky, J. Appl. Phys. **35**, 2055, (1964)
- [Matsui_00] S. Matsui, « Handbook of Nanostructured Materials and technology », vol 3 (electrical properties), Ch 11, 555 (2002)
- [Morelock_62] C.R.Morelock, Acta Metall. **10**, 161 (1962)
- [Nakahara_80] S. Nakahara and S. Mahajan, J. Electrochem. Soc.**127**, 283, (1980)
- [Nakahara_82] S. Nakahara and E. Felder, J. Electrochem. Soc. **129**, 45 (1982)

- [Niemeyer_01] C.M. Niemeyer, « Biomolecules Meet Nanoparticles » Angew. Chem. Int. Ed., **40**, 4128-4158, (2001)
- [Nogales_00] E. Nogales, Structural Insights into Microtubule Function. Annu. Rev. Biochem., **69**, 277-302, (2000)
- [Piriaux_97] L. Piriaux, S. Dubois, J. L. Duvail, K. Ounadjela, A. Fert, J. of Magn. Mag. Matt. **175**, 127 (1997)
- [Piriaux_04] L. Piriaux, A. Encinas, L. Vila, S. Matéfi- Tempfli, M. Matéfi- Tempfli, M. Darques, F. Elhoussine, S. Michotte, J. of Nanoscience and Nanotechnology, soumis
- [Simmons_90] R.G. Simmons, IEEE Trans. Magn. **26**, 93 (1990)
- [Tochitskii_95] T.A. Tochitskii, A.V. Boltushkin and, V.G. Shadrov, Rus. Journ. Electrochem 31, 178 (1995)
- [Vila_02a] L. Vila, J.M.George, L. Piriaux, A. Popa ,U. Ebels, K. Ounadjela, IEEE Transaction on Magnetic Mag, **38**, Part 5, 2577-2579, (2002)
- [Vila_02] L. Vila, L. Piriaux, J.M. George, A. Fert and G. Faini, Appl. Lett. **80**, 3805 (2002)
- [Vittoria_93] C. Vittoria, “Microwaves properties of magnetic films”, World Scientific, Singapore (1993)
- [Wu_94] G. Wu and T. Bein, Science **264**, 1757 (1994)

Conclusions générales

Dans ce mémoire, j'ai présenté une étude des propriétés magnétiques et structurales de différents types de nanostructures magnétiques. La forme de ces nanostructures a été variée de particules allongées (fils) vers des plots circulaires et carrés. Dans la préparation de ces nanostructures différentes méthodes ont été utilisées : lithographie par faisceau d'électrons, nano- impression, électrodéposition.

Un premier aspect qui nous a intéressé pendant ce travail a été l'influence des interactions dipolaires sur les propriétés magnétiques des plots plats de forme circulaire et carrée.

Dans le cas des plots circulaires nous avons montré la possibilité de contrôler le sens de circulation de l'aimantation à l'intérieur des plots en arrangeant les plots dans des différentes configurations. Nous avons analysé trois types des réseaux: des chaînes de deux plots, des chaînes des plots en zig- zag et des plots arrangés dans une structure hexagonale. Pour chaque réseau une corrélation entre les chiralités des vortex a été mise en évidence. La corrélation consiste pour le réseau des chaînes de deux plots dans l'apparition des vortex des chiralités opposés dans les deux plots qui forment la chaîne quand le champ externe est appliqué à 45° par rapport à l'axe de la chaîne.

Une corrélation plus importante a été observée dans le cas des plots arrangés dans un réseau en zig- zag et dans une structure hexagonale (qui peut être divisé dans des chaînes en zig- zag) qui consiste dans le fait que les plots dans une ligne qui compose la chaînes en zig- zag ont tous la même chiralité et les plots de l'autre ligne ont une chiralité opposé. Dans ces deux cas le champ a été appliqué parallèle aux chaînes.

Egalement, sur ces types de réseaux, on a mis en évidence l'existence d'une anisotropie du champ de nucléation et d'annihilation. Cette anisotropie se manifeste par la variation du champ de nucléation et d'annihilation avec l'angle fait par le champ magnétique extérieur avec l'axe de la chaîne.

Conclusions générales

Le deuxième système de plots étudié a été constitué des plots carrés de Co de taille 200nm et d'épaisseur 20nm. Les études MOKE ont montrées une dépendance de la forme des courbes d'hystérésis et du champ coercitif de la séparation entre les plots. Ainsi, les plots semblent se renverser par une rotation de l'aimantation, sans nucléation d'un vortex.

La valeur du champ coercitif augmente également avec l'augmentation de l'angle fait par le champ avec l'axe du réseau. Ce comportement a été expliqué par la présence d'une anisotropie configurationnelle assez importante dans les plots carrés.

Contrairement aux études MOKE, les études MFM ont montré que le renversement de l'aimantation dans les plots carrés a lieu par le passage par un état vortex. Ce désaccord apparaît à cause du fait que les conditions des mesures ont été différentes dans les deux cas. Pendant les mesures MFM l'influence du champ de fuite rayonné par la pointe magnétique utilisée pendant la mesure peut faciliter le basculement vers un état vortex.

En plus j'ai observé que la nucléation du vortex est précédé par la rotation de l'aimantation vers la diagonale du plot. Ceci a été expliqué par la présence de l'anisotropie configurationnelle dans ce système, anisotropie qui pour la taille et l'épaisseur de notre plots fait que l'état monodomaine préféré sera l'état « leaf » qui présente une orientation de l'aimantation suivant la diagonale du plot.

Ces mesures MFM nous ont permis de mettre en évidence également l'influence des interactions dipolaires sur le comportement des plots. Cette influence consiste dans la variation du champ de nucléation et d'annihilation du vortex avec la séparation entre les plots. Une autre conséquence directe de l'effet des interactions dipolaires entre les plots, quand la séparation est de 50nm, a été la présence d'un contraste magnétique en zig- zag pour des plots voisins.

En plus de l'étude des propriétés magnétiques, une place importante dans cette thèse est occupée par la fabrication de nanosystèmes. Nous avons montré la possibilité de former des petites particules à partir d'une couche continue ou discontinue de Co sous l'effet simultané de l'irradiation et du recuit in-situ.

L'irradiation et le chauffage in-situ d'une couche discontinue de Co conduit à la formation des particules, leur taille augmentant avec le temps d'irradiation. Le temps nécessaire à la formation des particules à partir d'une couche discontinue ou d'une couche continue est comparable. Avoir une couche continue de départ, c'est une condition qui assure un meilleur contrôle de la position et de la taille des particules.

Conclusions générales

Cette méthode permet par la focalisation du faisceau d'électrons, la formation des particules de petite taille localement. La position des particules peut être contrôlée en laissant le faisceau d'électrons fixe et déplaçant l'échantillon.

Finalement, un aspect assez intéressant analysé pendant cette thèse a été l'influence des différents paramètres de préparation sur les propriétés magnétiques et structurales des nanofils de Co, fabriqués par électrodéposition.

La variation du diamètre de fils entre 18 nm et 40nm a montré que le diamètre n'influence pas l'orientation de l'axe c dans les fils. La présence des grains avec différentes orientations de l'axe c a été mise en évidence dans les fils de 18nm comme dans les fils de 40nm, seule la taille des grains a augmenté avec le diamètre.

Le contrôle de l'orientation de l'axe c a été possible par la variation de la valeur du pH de la solution électrolytique et de la valeur du courant de dépôt. Pour les fils de 29 nm la variation du pH entre 2.0 et 6.4 a montré que l'axe c s'oriente parallèle à l'axe du fil pour des petites valeurs du pH et perpendiculaire à l'axe du fil pour les valeurs du pH plus grandes.

Le dépôt à faible courant de dépôt favorise la croissance des fils avec un axe c le long de l'axe du fil et en augmentant la valeur du courant l'axe c s'oriente perpendiculairement à l'axe du fil dans une certaine gamme de pH.

Annexe 1

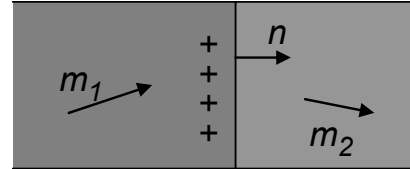
Calcul du champ dipolaire

Une expression générale du champ magnétostatique peut être obtenue avec l'aide de la théorie du potentiel. La densité des charges de volume λ_v et de surface σ_s peut être calculée en

fonction de l'aimantation $m(r) = \frac{J(r)}{J_s}$:

$$\lambda_v = -\text{div}(m)$$

$$\sigma_s = m \cdot n$$



où n est la normale à la surface.

Si on considère deux régions avec des différentes valeurs de l'aimantation m_1 et m_2 , les charges de l'interface sont données par :

$$\sigma_s = (m_1 - m_2) \cdot n$$

Avec ces quantités, le potentiel dans une position r est donné par l'intégration suivant r' :

$$\Phi_d(r) = \frac{J_s}{4 \cdot \pi \cdot \mu_0} \left[\int \frac{\lambda_v(r')}{|r - r'|} dV' + \int \frac{\sigma_s(r')}{|r - r'|} dS' \right]$$

et le champ magnétostatique est :

$$H_d(r) = -\text{grad}[\Phi_d(r)]$$

L'énergie démagnétisante est donnée par la formule:

$$E_d = J_s \left[\int \lambda_v(r) \cdot \Phi(r) dV + \int \sigma_s(r) \cdot \Phi(r) dS \right]$$

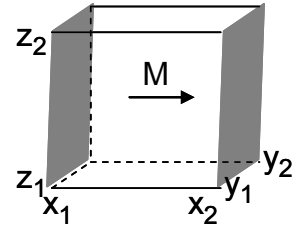
Le calcul du champ magnétostatique est très complexe et nécessite un calcul numérique. Pour le faciliter on va faire quelques approximations : les éléments vont être rectangulaires et finîtes et les charges magnétiques sont constantes. Dans ce cas les intégrales seront remplacées par des fonctions du type :

ANNEXE 1

$$\begin{aligned}
 F_{000} &= \frac{1}{r} \\
 F_{100} &= \int F_{000} dx = L_x \\
 F_{200} &= \int F_{100} dx = x \cdot L_x - r \\
 F_{110} &= \int F_{100} dy = y \cdot L_x + x \cdot L_y - P_z \\
 F_{210} &= x \cdot y \cdot L_x + \frac{1}{2} \cdot (u - w) \cdot L_y - x \cdot P_z - \frac{1}{2} \cdot y \cdot r \\
 F_{111} &= x \cdot y \cdot L_z + x \cdot z \cdot L_y + y \cdot z \cdot L_x - \frac{1}{2} \cdot (x \cdot P_x + y \cdot P_y + z \cdot P_z)
 \end{aligned}$$

Dans le cas d'un élément cubique où l'aimantation est orientée suivant la direction x, on ne considère pas des charges de volume, seulement des charges de surface, situées sur les deux plans gris montrés sur la figure.

Le potentiel dans une position (x, y, z) est donné par :



$$\begin{aligned}
 \Phi(x, y, z) &= \int_{x_1}^{x_2} \int_{y_1}^{y_2} \int_{z_1}^{z_2} \frac{\sigma \cdot \delta(x - x') dx' dy' dz'}{\sqrt{(x - x')^2 + (y - y')^2 + (z - z')^2}} \\
 \Phi(x, y, z) &= M_S \cdot \int_{y_1}^{y_2} \int_{z_1}^{z_2} \frac{dy' dz'}{\sqrt{(x - x_2)^2 + (y - y')^2 + (z - z')^2}} - M_S \cdot \int_{y_1}^{y_2} \int_{z_1}^{z_2} \frac{dy' dz'}{\sqrt{(x - x_1)^2 + (y - y')^2 + (z - z')^2}} \\
 \Phi(x, y, z) &= M_S \cdot \int_{y_1}^{y_2} [F_{001}(x - x_2, y - y', z - z_2) - F_{001}(x - x_2, y - y', z - z_1)] dy - \\
 &\quad - M_S \cdot \int_{y_1}^{y_2} [F_{001}(x - x_1, y - y', z - z_2) - F_{001}(x - x_1, y - y', z - z_1)] dy \\
 \Phi(x, y, z) &= M_S \cdot [F_{011}(x - x_2, y - y', z - z_2) - F_{011}(x - x_2, y - y', z - z_1)] \Big|_{y_1}^{y_2} - \\
 &\quad - M_S \cdot [F_{011}(x - x_1, y - y', z - z_2) - F_{011}(x - x_1, y - y', z - z_1)] \Big|_{y_1}^{y_2}
 \end{aligned}$$

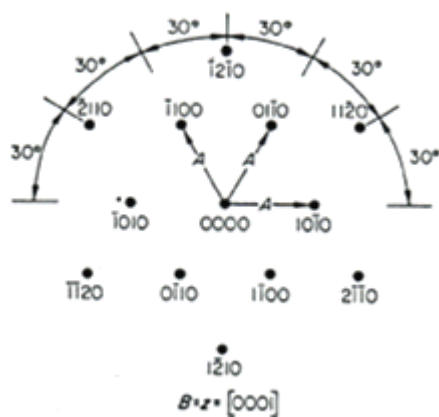
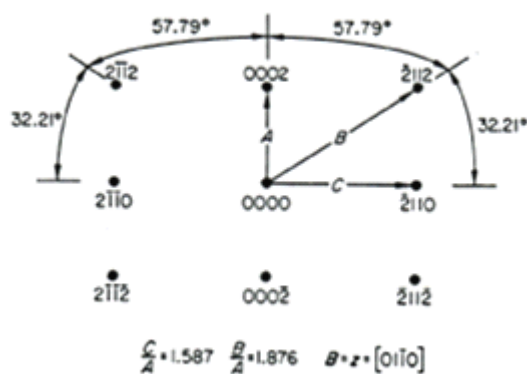
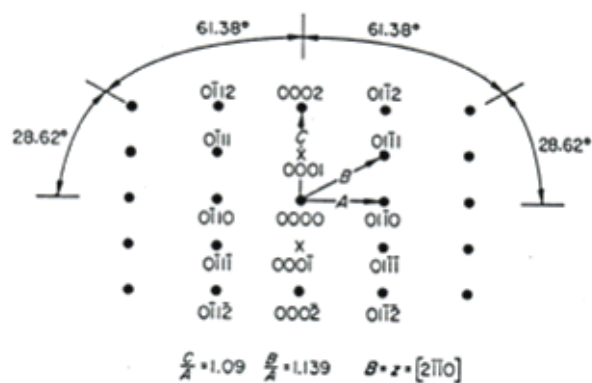
Le champ dipolaire est donné par les expressions:

$$H_x = -\frac{\partial \Phi}{\partial x}, \quad H_y = -\frac{\partial \Phi}{\partial y}, \quad H_z = -\frac{\partial \Phi}{\partial z}$$

Annexe 2

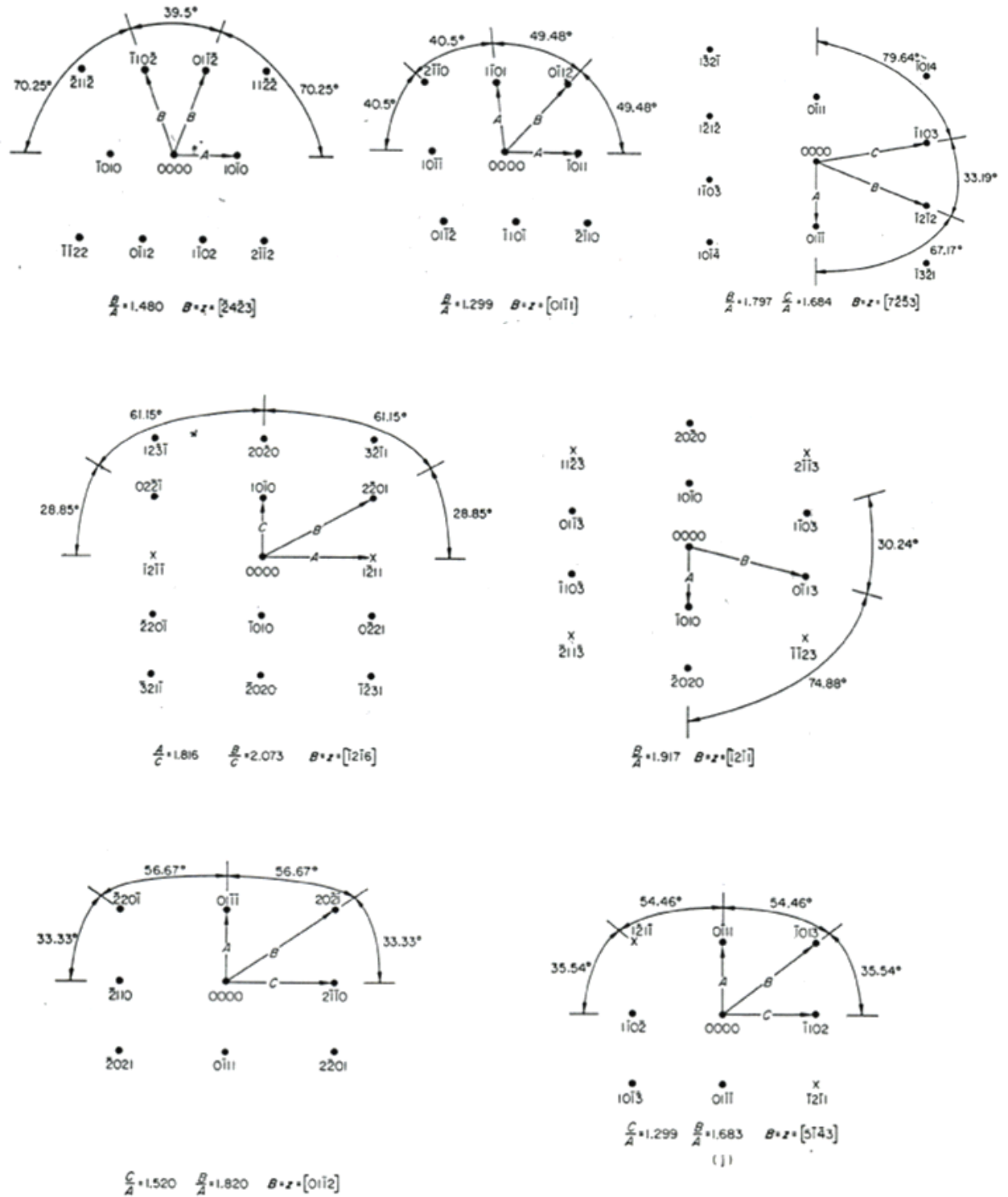
Images de diffraction théoriques

Les images de diffractions calculées théoriquement¹ pour Co avec une structure h.c.p sont présentées par la suite.

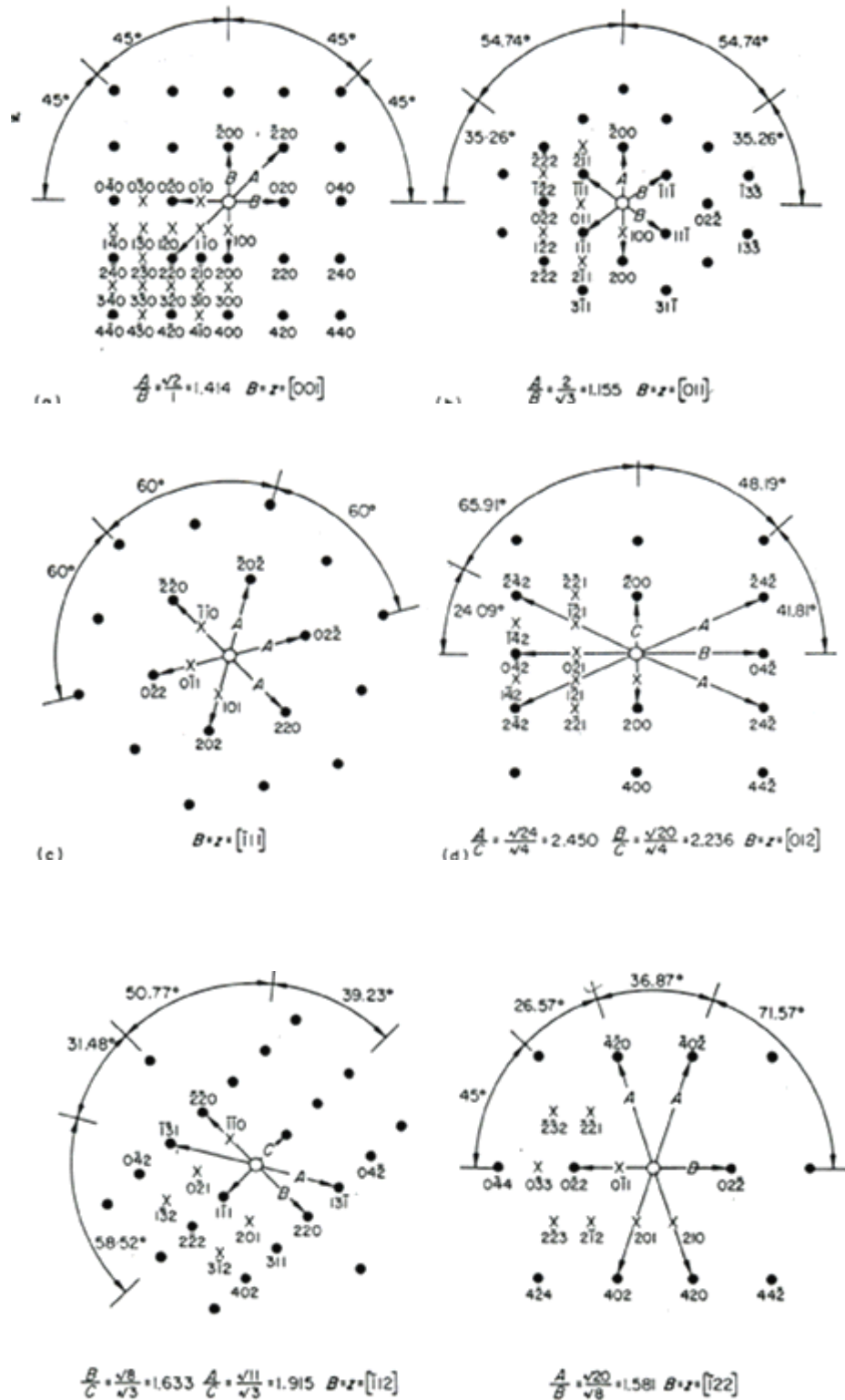


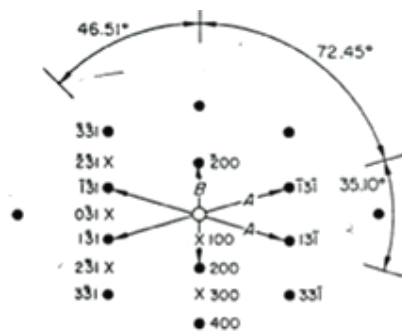
¹ K.W. Andrews, D.J. Dyson, S.R. Keown « Interpretation of electrons diffraction patterns », Hilger- Watts, London

ANNEXE 2

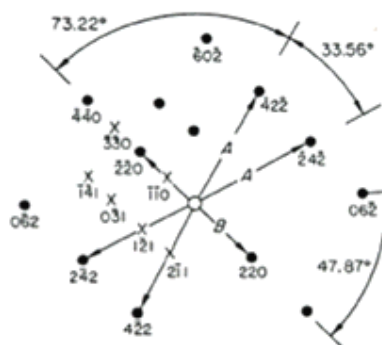


Les images de diffractions calculées théoriquement pour Co avec une structure f.c.c. sont présentées par la suite.

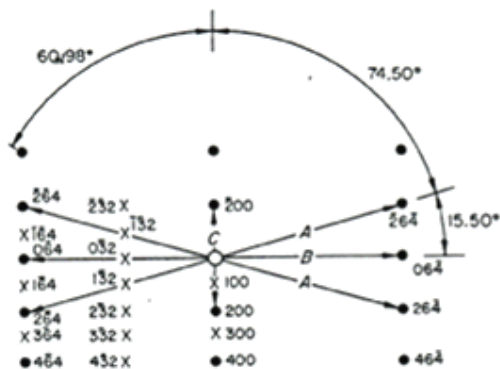




$$\frac{A}{B} = \frac{\sqrt{11}}{\sqrt{4}} = 1.658 \quad B \cdot Z \cdot [013]$$



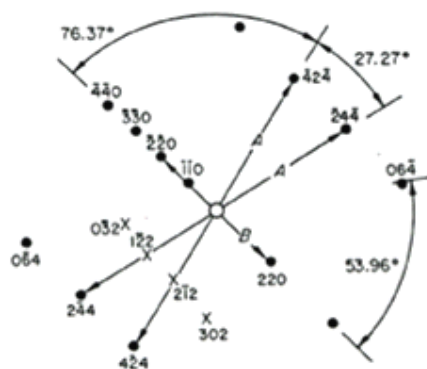
$$\frac{A}{B} = \frac{\sqrt{24}}{\sqrt{6}} = 1.732 \quad B \cdot Z \cdot [113]$$



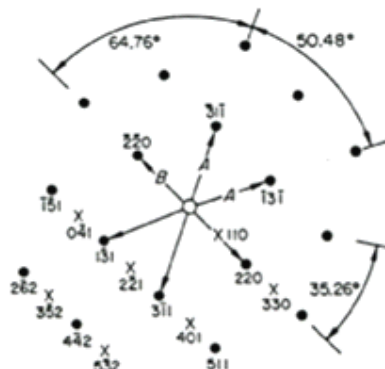
$$(1) \frac{A}{C} = \frac{\sqrt{55}}{\sqrt{4}} = 3.242 \quad \frac{B}{C} = \frac{\sqrt{32}}{\sqrt{4}} = 3.606 \quad B \cdot Z \cdot [023]$$



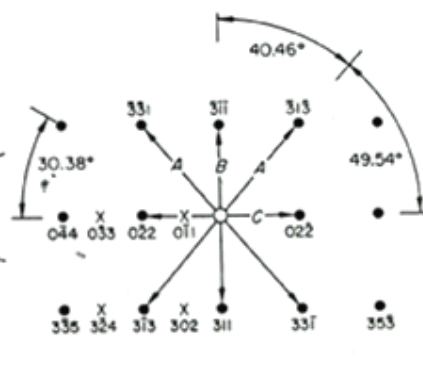
$$(1) \frac{A}{B} = \frac{\sqrt{20}}{\sqrt{3}} = 2.582 \quad \frac{B}{C} = \frac{\sqrt{19}}{\sqrt{3}} = 2.517 \quad B \cdot Z \cdot [123]$$



$$\frac{A}{B} = \frac{\sqrt{35}}{\sqrt{6}} = 2.121 \quad B \cdot Z \cdot [223]$$



$$\frac{A}{B} = \frac{\sqrt{11}}{\sqrt{8}} = 1.173 \quad B \cdot Z \cdot [114]$$



$$\frac{A}{C} = \frac{\sqrt{19}}{\sqrt{8}} = 1.541 \quad \frac{B}{C} = \frac{\sqrt{11}}{\sqrt{8}} = 1.173 \quad B \cdot Z \cdot [233]$$

Annexe 3

Simulations micromagnétiques avec le logiciel OOMMF

Le renversement magnétique de plots circulaires de Py a été investigué en utilisant le code public OOMMF (<http://math.nist.gov/oommf/>). Ce code permet de déterminer les états d'équilibre d'un système ferromagnétique en minimisant l'énergie totale du système. L'énergie totale du système a plusieurs composantes : l'énergie d'échange, l'énergie Zeeman, l'énergie d'anisotropie et l'énergie dipolaire.

$$E_{tot} = E_{ech} + E_{dip} + E_{anis} + E_{zeeman}$$

Dans nos simulations l'énergie d'anisotropie magnétocristalline a été négligée. Les configurations de l'aimantation qui minimisent la fonctionnelle de l'énergie totale, correspondent aux états d'équilibre du système.

Pour minimiser l'énergie totale par rapport à l'aimantation M sous la contrainte $|\vec{M}| = M_s$, l'intégration numérique de l'équation Landau- Lifshitz- Gilbert (LLG) a été choisie.

L'algorithme numérique repose sur la méthode des différences finies en utilisant un maillage 2D avec une seule cellule en épaisseur.

Pendant notre calcul nous avons utilisé les paramètres suivants :

- l'aimantation à la saturation : $M_s = 860 \cdot 10^3 \frac{A}{m}$
- la constante d'échange : $A_{ech} = 13 \cdot 10^{-12} \frac{J}{m}$

Un pas de maillage de 5nm a été utilisé pendant le calcul. Ce pas de maillage est inférieur à la

longueur d'échange : $l_{ex} = \sqrt{\frac{A_{ech}}{2 \cdot \pi \cdot M_s^2}}$ qui pour le NiFe est égale à 5.7nm.

ANNEXE 3

L'état d'équilibre est atteint lorsque le couple du champ magnétique qui agit sur l'aimantation locale du système descend sous une limite fixée à $\varepsilon = 10^{-5}$.

$$\max \frac{|\vec{M} \times \vec{H}_{eff}|}{4 \cdot \pi \cdot M_s^2} \leq \varepsilon$$